

KOCAELİ ÜNİVERSİTESİ * FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

78214

TERMOLUMINESANS YÖNTEMİYLE KUVARS KRİSTALİNİN
TUZAK ENERJİ PARAMETRELERİNİN BELİRLENMESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Seda GÜNEŞDOĞDU

78214

Anabilim Dalı : Fizik

Danışman : Prof. Dr. Nafiye KIYAK

OCAK 1998

DOKÜmantasyon MERKEZİ

TERMOLUMINESANS YÖNTEMİYLE KUVARS KRİSTALİNİN
TUZAK ENERJİ PARAMETRELERİNİN BELİRLENMESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ
Seda GÜNEŞDOĞDU

Tezin Enstitüye Verildiği Tarih : 05.01.1998
Tezin Savunulduğu Tarih : 05.02.1998

Tez Danışmanı Üye Üye
Prof.Dr.Nafiye KIYAK Doç.Dr.Akif ATALAY Doç.Dr.Elşen VELİ

(...*Nafiye Kiyak*.....) (...*Akif Atalay*.....) (...*Elşen Veli*.....)

28219

OCAK 1998

TERMOLUMINESANS YÖNTEMİYLE KUVARS KRİSTALİNİN TUZAK ENERJİ PARAMETRELERİNİN BELİRLENMESİ

Seda GÜNEŞDOĞDU

Anahtar Kelimeler: Termoluminesans, Kuvars, Gama Radyasyonu, Radyasyon Dozimetrisi

Özet: Radyoaktif ışınlar, madde ile etkileşiklerinde madde içinde kalıcı olan bir takım fiziksel ve kimyasal değişiklikler meydana getirirler. Fiziksel bir teknik olarak bilinen termoluminesan olay, madde içinde oluşan fiziksel değişiklikleri incelemek için kullanılmaktadır.

Bu çalışmada, kuvars kristalinin termoluminesans özellikleri incelenmiştir. Bunun için kuvars kristali 100°C , 200°C ve 300°C sıcaklıklarında aniliye edilmiş ve aniliye edilen örnekler 0.16 kGy , 0.33 kGy , 0.66 kGy ve 0.99 kGy γ -ışaması altında ışınlanılmışlardır. Daha sonra ışınlanan örnekler $3.1 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$, $5.2 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$, $7.1 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$, $9.4 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$ ısıtma hızında ısıl ışına eğrileri çizilmiştir. Bu ısıl ışına eğrileri yardımıyla doz-TL sayımlı ilişkisi ile ısıtma hızı-pik sıcaklığı arasındaki ilişkiye bakılmış ve enerji tuzak parametreleri belirlenmiştir.

Doz-TL sayımlı ilişkisi sürekli bir lineerlik gösterildiği ve bu nedenle kuvars mineralinin radyasyon dozimetresinde kullanılabileceği saptanmıştır. Isıtma hızına bağlı olarak pik sıcaklığının kayması, elektron tuzak derinliklerinin belirlenmesinde bir yöntem olarak kullanılmıştır. Bu işlemde kuvars kristalinin enerji parametrelerinin farklı anılayışon sıcaklıkları ve ışınlama dozlarına göre farklı değerler aldığı saptanmıştır.

DETERMINATION OF TRAP ENERGY PARAMETERS OF QUARTZ BY THERMOLUMINESCENT METHOD

Seda GÜNEŞDOĞDU

Keywords: Thermoluminescence, Quartz, Gamma Radiation, Radiation Dosimetry.

Abstract: Nuclear radiation causes physical and chemical changes in matters when irradiated. The change in materials caused by irradiation can be detected by different methods. Among these methods, Thermoluminescence (TL) as a physical technique, can be used to investigate these physical changes in matters.

In this study, TL properties of quartz have been investigated by TL method. For this aim, the crystalline powder quartz samples are annealed at 100°C , 200°C and 300°C respectively. The samples annealed at various temperatures are irradiated at 0.16 kGy, 0.33 kGy, 0.66 kGy, 0.99 kGy under gamma radiation. Irradiated samples are then measured at rate of temperatures of 3.1°C/s , 5.2°C/s , 7.1°C/s , 9.4°C/s and their glow curves are recorded. In addition, the dose-TL relationship is determined by means of glow curves recorded.

The relationship between dose and TL measurements shows a linearity in the investigated dose range. That is, the TL measurements increase with the irradiation dose. For this reason this material can be used in radiation dosimetry.

The shift of peak temperatures depending on the rate of temperature is used as a method to determine the trap depths of electrons. In this study, the energy parameters of crystalline quartz are found to have different values depending on various annealing temperatures and also on irradiation doses.

ÖNSÖZ VE TEŞEKKÜR

Bu çalışmada kuvars kristalinin termoluminesans özellikleri farklı sıcaklıklarda aniliye edilmesine bağlı olarak 0.16 kGy, 0.33 kGy, 0.66 kGy ve 0.99 kGy gama ışımı altında incelenmiş, doz-TL sayımlı ilişkisi ile ısıtma hızı-pik sıcaklığı arasındaki ilişki ve enerji tuzak parametreleri belirlenmiştir.

Bu çalışmaya katkılarından dolayı başta değerli hocam Doç. Dr. Nafiye Kiyak'a, Dekanımız Prof. Dr. Yüksel Bektöre'ye, Fen Bilimleri Enstitüsüümüz Prof. Dr. Latif Topaktaş'a, çalışmamızın deneysel kısmının gerçekleşmesinde laboratuar olanaklarını sunan Dr. Birol Engin'in şahsında Ankara Nükleer Araştırma Merkezi'ne, desteklerini her zaman yanında hissettiğim sevgili hocalarımı, arkadaşlarımı ve aileme teşekkürlerimi sunmayı bir borç bilirim.

İÇİNDEKİLER

ÖZET	ii
ABSTRACT	iii
ÖNSÖZ ve TEŞEKKÜR	iv
İÇİNDEKİLER	v
SİMGELER DİZİNİ ve KISALTMALAR	viii
ŞEKİLLER LİSTESİ	xii
TABLolar LİSTESİ	xvi
BÖLÜM 1. GİRİŞ	1
1.1. Termolüminesans Olayının Tarihçesi	2
BÖLÜM 2. KATILARIN BAND YAPILARI VE ÖZELLİKLERİ	4
2.1. Kristallerde Bağlanma ve Bağ Çeşitleri	4
2.1.1. İyonik bağ	5
2.1.2. Kovalent bağ	5
2.1.3. Metalik bağ	5
2.1.4. Van der Waals bağ	6
2.2. Katıların Band Teorisi	6
2.2.5. Katılarda iletkenlik ve yalıtkanlık	7
2.2.1. Katılarda yarıiletkenlik	7
BÖLÜM 3. LÜMİNESANS VE TERMOLÜMİNESANS OLAY	13
3.1. Lüminesans Olay	13
3.1.1. Fosforesans ve Floresans olayı	14
3.2. Termolüminesans Olay	15
3.3. Band Teorisine Göre Termolüminesans Olay.....	17
3.3.1. Termolüminesans kusurların meydana gelişisi.....	17
3.3.2. Tuzak ve yeniden birleşme merkezleri.....	20

3.3.3. Yeniden birleşme olayları.....	24
3.4. Termolüminesans Modelleri	26
3.4.1. Randall- Wilkins modeli	27
3.4.2. Garlick-Gibson modeli	29
3.4.3. Genel mertebe modeli	30
3.5. Tuzak Enerji ve Parametrelerinin Belirleme Yöntemi	32
3.5.1. Farklı ıslıtma hızları yöntemi	32
BÖLÜM 4. RADYASYON FİZİĞİ VE RADYOAKTİVİTE	34
4.1. Radyasyon ve Enerji	34
4.2. Radyoaktivite ve Radyoaktif Işınlar	35
4.3. Parçacık Karakterli Işınlar	36
4.3.1. Alfa (α) parçacıkları	36
4.3.2. Beta (β) parçacıkları	37
4.4. Elektromanyetik Karakterli Işınlar	37
4.4.1. Gama (γ) ışınları	38
4.5. Radyasyonun Madde ile Etkileşmesi	38
4.5.1. Fotoelektrik olay	38
4.5.2. Compton olayı	39
4.5.3. Çift oluşumu	39
4.6. Radyoktif Bozunum Yasası ve Bozunum Yarıömrü	40
4.7. Radyasyonun Deteksiyonu ve Ölçülmesi	41
4.7.1. Fotografik emilsiyonlar	41
4.7.2. Gaz iyonizasyon cihazları	41
4.7.3. Sintilasyon detektörleri	41
4.7.4. Kimyasal bozunma detektörleri	42
4.7.5. Lüminesans ortamlar (Termolüminesans dozimetreleri)	42
4.8. Radyasyon Dozimetrisi ve Doz Birimleri	42
4.8.1. Işınlama doz birimleri	43
4.8.2. Absorblama doz birimleri	43
BÖLÜM 5. DENEYSEL ÇALIŞMA	45
5.1. Termolüminesans Okuyucusu	45

5.2. Termolüminesans Ölçme ve Okuma Sistemi	46
5.3. Isıtma Sistemi	48
5.4. Anilasyon (Tavlama) İşlemi	49
5.5. Örneklerin Işınlanması	49
5.6. Termolüminesans Ölçümleri	50
 BÖLÜM 6. SONUÇLAR VE DEGERLENDİRME	52
6.1. Kuvars'ın yapısı	52
6.2. Isıl- İşıma Eğrileri	53
6.3. Doz-TL Sayım İlişkisi	67
6.4. Doz- Isıtma Hızı İlişkisi	67
6.5. Farklı Isıtma Hızları Yöntemi İle Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi	70
6.6. Sistematik Hatalar	80
6.7. Sonuç	80
 KAYNAKLAR	83
ÖZGEÇMİŞ	86

SİMGELER DİZİNİ ve KISALTMALAR

- A : Kütle numarası
- A_r^n : Birim zamandaki yeniden birleşme geçiş katsayısı
- A_r^p : Birim hacimdeki yeniden birleşme geçiş katsayısı
- α : Alfa ışınması
- b : Kinetik mertebesi
- β : Kristalin ısıtma hızı
- β : Beta ışını
- β^+ : Pozitron
- c : İşık hızı
- C : Orantı sabiti
- D_h : Aıcı seviye ile iletkenlik bandı arasındaki tuzak derinliği
- D_e : Verici seviye ile valans bandı arasındaki tuzak derinliği
- E : Elektromanyetik radyasyon
- E : Enerji tuzak derinliği
- E_a : Aıcıların enerji seviyesi
- E_g : Yasak enerji aralığı
- E_F : Fermi enerjisi
- E_k : Kinetik enerji
- E_v : Vericilerin enerji seviyesi
- F(E) : Fermi fonksiyonu
- F(r) : Atomik kuvvet
- γ : Gama ışını
- h : Planck sabiti
- I(t) : Işıma şiddeti
- I_0 : Başlangıçtaki ışıma şiddeti
- λ : Bozunma sabiti
- k : Boltzman sabiti

- m_p : Parçacık kütlesi
 m_e : Elektronun kütlesi
 n_e : Elektron yoğunluğu
 n_p : Foton yada parçacık sayısı
 n : Tuzaklanmış elektronların sayısı
 $n(E)$: Elektronlarla dolu durumların sayısı
 n_0 : Başlangıçta tuzaklarda tuzaklanmış elektron sayısı
 N : Toplam tuzak sayısı
 $N(E)$: Durum enerji yoğunluğu
 $N(t)$: t anında bozunmamış olarak kalan çekirdek sayısı
 $N(0)$: Başlangıçtaki radyoaktif çekirdek sayısı
 N_a^- : Alıcı yoğunluğu
 N_v : Katkı yoğunluğu
 N_v^+ : Verici yoğunluğu
 μ_n : Elektron mobilitesi
 μ_p : Boşluk mobilitesi
 p : Boşluk yoğunluğu
 p : Elektronların tuzaklardan kaçma olasılığı
 p' : Yeniden birleşme olasılığı
 P_r : İşimli geçiş olasılıklarının oranı
 P_{nr} : İşimsiz geçiş olasılıklarının oranı
 Q : Radyasyon miktarı
 q : Elektrik yükü
 ρ : Olasılık yoğunluğu
 σ : İletkenlik
 σ_a : Alıcı iletkenliği
 σ_n : (-) yüklü elektronların iletkenliği
 σ_p : (+) yüklü boşlukların iletkenliği
 σ_v : verici iletkenliği
 τ : Uyarılma seviyelerinde elektronun kalma süresi
 η : Lüminesans verimi

R	: Röntgen
r₀	: Atomlar arası uzaklık
rad	: Rad
S	: Radyasyonun geçtiği yüzey
s	: Frekans faktörü
s'	: Ön eksponansiyel faktör
s_e	: Ayırm sabiti
s_h	: Ayırm sabiti
φ	: Akı
T	: Mutlak sıcaklık
t	: Zaman
T₀	: Başlangıçtaki sıcaklık
T_{1/2}	: Yarı ömür
T_m	: İşıma eğrisinin en büyük değerine karşılık gelen sıcaklık
v	: Radyasyon frekansı
ν	: Nötrino
ν̄	: Antinötrino
v	: Parçacık hızı
W	: Enerji genişliği
V(r)	: Potansiyel enerji
X	: X ışını
Z	: Atom numarası

ANAEM	: Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezi
DA	: Doğru akım
esb	: Elektrostatik yük birimi
IR	: Kırmızıötesi ışın
ICRU	: Uluslararası Radyasyon Birimleri Komisyonu
IR	: Kırmızıötesi ışın
Gy	: Gray
TL	: Termolüminesans

TLD : Termolüminesans dozimetre

TSC : Termik uyarı iletkenliği

UV : Morötesi ışın

ŞEKİLLER LİSTESİ

Şekil 2.1. Bir katıdaki iletkenlik ve valans bandlarının gösterimi	6
Şekil 2.2. a) Bir iletkenin band yapısı b) Bir yarıiletkenin band yapısı c) Bir yalıtkanın band yapısı	7
Şekil 2.3. İki farklı sıcaklık için enerjinin (kT) bir fonksiyonu olarak Fermi fonksiyonu	9
Şekil 2.4. Verici ve alıcı enerji seviyelerinin yasak enerji aralığındaki yeri	10
Şekil 2.5. Alıcı ve verici yarıiletkenler için Fermi enerji seviyesinin sıcaklıklla değişimi	12
Şekil 3.1. Floresans ve fosforesans oluşumu ve enerji seviyeleri (s): soğurma süreci (f): floresans olayı (fs): fosforesans olayı	14
Şekil 3.2. Termolüminesans ışına şiddeti $I(t)$ ile tuzak merkezlerinde tuzaklanmış elektron yoğunluğunun zamanla değişimi	16
Şekil 3.3. İdeal ve kusurlu NaCl kristalin iki boyutlu örgü yapısının karşılaştırılması	18
Şekil 3.4. $T= 0^0\text{K}$ 'de yalıtkan özellik gösteren yarıiletken kristalin, boşluk ve elektron merkezlerinin, tuzak ve yeniden birleşme merkezlerine göre durumu.....	20
Şekil 3.5. Yarıiletkenler ve yalıtanlarda görülen elektronik geçişler	21
Şekil 3.6. Bir yarıiletken veya yalıtkan kristalde iletkenlik veya değerlik bandlarını içermeyen elektron geçişleri	23
Şekil 3.7. Lüminesans ışımının termik olarak bastırılmasını açıklayan Schön ve Klasens modeli	25
Şekil 4.1. Kurşunun teorik lineer soğurma katsayısının foton enerjisine göre değişimi	39
Şekil 4.2. Gama ışınının madde ile etkileşmesinin şematik gösterimi	40
Şekil 5.1. Termolüminesans dozimetre okuyucusunun blok şeması	46
Şekil 5.2. Bir termolüminesans okuyucu için araştırma amaçlı ısıtma çevrimleri	49

Şekil 6.1. α- kuvars'ın rhombohedral yapısında silikon yerleşiminin gösterimi	53
Şekil 6.2. 100°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	54
Şekil 6.3. 200°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	55
Şekil 6.4. 300°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	56
Şekil 6.5. 100°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	57
Şekil 6.6. 200°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	58
Şekil 6.7. 300°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	59
Şekil 6.8. 100°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	60
Şekil 6.9. 200°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	61
Şekil 6.10. 300°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	62
Şekil 6.11. 100°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışma eğrileri ve TL sayımları	63
Şekil 6.12. 300°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama	

dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışına egrileri ve TL sayımları	64
Şekil 6.13. Kuvars mineralinin 3.1°C/s (Mavi), 5.2°C/s (Pembe), 7.1°C/s 7.1°C/s (Kırmızı), 9.4°C/s (Yeşil) ısıtma hızı değerinde ışınlama dozu ile TL sayımları arasındaki ilişki (doz-etki ilişkisi) Anilasyon sıcaklıklar (a) 100°C (b) 200°C (c) 300°C	68
Şekil 6.14. Kuvars mineralini 0.16 kGy (lacivert), 0.33 kGy (pembe), 0.66kGy (sarı), 0.99 kGy (mavi) gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarına göre elde edilen maksimum pik sıcaklık değerleri. Anilasyon sıcaklıkları (a) 100°C (b) 200°C (c) 100°C	69
Şekil 6.15. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	73
Şekil 6.16. 200°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	73
Şekil 6.17. 300°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	74
Şekil 6.18. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	74
Şekil 6.19. 200°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	75
Şekil 6.20. 300°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	75
Şekil 6.21. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	76

Şekil 6.22. 200 ⁰ C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	76
Şekil 6.23. 300 ⁰ C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	77
Şekil 6.24. 100 ⁰ C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	77
Şekil 6.25. 300 ⁰ C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması	78

TABLALAR DİZİNİ

Tablo 5.1. Kuvars örneklerin ışınlanma süreleri ve aldığı radyasyon dozlarının eski ve yeni birimlerle ifadesi	51
Tablo 6.1. 100 °C, 200 °C, 300 °C aniliye edilen kuvars mineraline ışınlanan radyasyon dozu ile TL sayımının değişimi.....	65
Tablo 6.2. 0.16 kGy'e radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ışınma pikinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.....	70
Tablo 6.3. 0.33 kGy'e radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ışınma pikinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.....	71
Tablo 6.4. 0.66 kGy'e radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ışınma pikinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.....	71
Tablo 6.5. 0.99 kGy'e radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ışınma pikinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.....	72
Tablo 6.6. 0.16 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde bulunan E tuzak derinlikleri ve s frekans faktörleri.....	78
Tablo 6.7. 0.33 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde bulunan E tuzak derinlikleri ve s frekans faktörleri.....	79
Tablo 6.8. 0.66 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde bulunan E tuzak derinlikleri ve s frekans faktörleri.....	79

1.GİRİŞ

Yaşadığımız çevre doğal bir radyasyon banyosu içinde yer almaktadır. Bu radyasyon banyosuna en büyük katkıyı uranyum ve toryum bozunum zincirinde yer alan radyoaktif izotoplardır, potasyum-40 izotopu, uzaydan dünyamıza ulaşan kozmik ışınlar, ve karbon-14 yapar. Bu ortamda bulunan her madde, bulunduğu sürece, söz konusu radyoaktif ışınların etkisi altında kalır.

Radyoaktif elementler iki tür ışınım yayar. Bunlar alfa ve beta gibi parçacık yapılı ışınlar ile elektromanyetik enerji karakterinde olan gama ışınlarıdır. Bu ışınlar madde ile etkileştiğinde madde içinde kalıcı olabilen bir takım fizikal ve kimyasal değişiklikler meydana getirirler. Radyoaktif ışınların etkisi ile meydana gelen bu değişimler, maddenin etkisinde kaldığı radyasyon miktarı ile orantılıdır. Doğal radyasyonların madde içinde meydana getirdikleri ve madde tarafından korunan bu değişimler, “Nükleer Teknikler” olarak adlandırılan bazı fizikal metodlarla ölçülebilmekte ve böylece o maddenin o ortamda bulunduğu sürece toplam ne kadar radyasyona maruz kaldığı saptanabilmektedir.

Radyoaktif ışınlar, özellikle yarıiletken maddeler ile etkileşmeleri sonucu madde yapısında bulunan kusur veya kirliliklerden dolayı bazı kalıcı etkiler meydana getirirler. Yarıiletken maddelerin içinde meydana gelen bu etkileri saptıyalırmak amacı ile kullanılan nükleer tekniklerden bazıları Termolüminesans (TL), Elektron Spin Rezonans (ESR) ve Nükleer iz analiz teknikleridir.

Termolüminesans olay, katıların band teorisi ile açıklanmaktadır. Bu tezin ikinci bölümünde ayrıntılı olarak anlatılmıştır. Kristal yapılı katı maddelerde valans bandında bulunan elektronlar radyasyon etkisiyle uyarıp iletkenlik bandına geçişleri esnasında iki band arasında yer alan yasak band aralığında tuzak ve potansiyel çukurlarında yakalanırlar. Termik enerji aldıklarında, tuzaklarda yalıtılmış olarak bulunan elektronlar yeniden iletkenlik bandına çıkabilir ve bir ışık salarak tekrar

valans bandına dönebilirler. Bu elektronlardan bazıları tuzaklarda 10^6 ile 10^8 yıl gibi uzun bir süre kalabilme özelliği gösterirler. Bu elektronların uyarıldıkları seviyeden kararlı enerji seviyelerine dönüşleri esnasında yayınladıkları ışığın şiddeti, tuzaklarda yakalanmış elektron sayısı, yani kristal tarafından yutulan radyasyon dozu ile orantılıdır. Madde tarafından alınan radyasyon dozunun ıslık işlemle bu yöntemle belirlenmesine “termolüminesans işlem” denir.

Bir nükleer teknik olarak termolüminesans işleminin, arkeoloji, jeoloji, katıhal fiziği, biyoloji, organik kimyada çeşitli kullanım alanları vardır.

Tezin üçüncü bölümünde termolüminesans olay ile ilgili temel kavramlar üzerinde durularak TL teorileri incelenmiştir. Ayrıca termolüminesans işlemini uyguladığımız kuvars mineralinin enerji tuzak derinliğini ve parametrelerini belirlemek için kullandığımız farklı ısıtma yöntemi verilmiştir.

Aniliye (tavlama) edilen kuvars mineralinin yapısı, ışınlamada kullanılan radyoaktif gama ışınının özellikleri ile diğer radyoaktif ışınlardan farkı, radyasyonların maddeyle etkileşmeleri ve radyasyon doz birimleri ise dördüncü bölümde ele alınmıştır. Beşinci bölümde yapılan deneysel çalışmada kullanılan cihaz olan TL cihazı ve ölçümler hakkında açıklamalar yapılmıştır. Son bölümde ise yapılan çalışmaların sonuçları ve değerlendirmeleri yer almaktadır.

1.1. Termolüminesans Olayının Tarihçesi

Termolüminesans’ın varlığı 300 yıl öncesinden bilinmektedir. Termolüminesans (TL), ilk defa Boyle tarafından 1663 yılında elmas kristalinde, daha sonra da Elsholtz ve Oldenburg tarafından florit kristalinde gözlenerek kayıtlara geçirilmiştir. Bu zaman aralığında birçok benzer araştırmalar yapılmıştır. Kuvars mineralinde ise termolüminesans deneylerini ilk olarak Du Fay (1738) gerçekleştirmiştir.

Radyoaktivitenin keşfinden sonra H. Bequerel , radyum ışıması altındaki florit kristalinde TL ve anilasyon olayını incelemiştir. Daha sonra Wiedeman (1895) doğal radyoaktivitenin, minerallerin TL özelliklerine olan etkisini tespit etmiştir.

Yüzyılımızın ilk otuz yılında, özellikle radyasyon altında minerallerin renklendirilmesi ile ilgili olarak birçok yayın yapılmış olup, bunlardan büyük çoğunluğu iyonize edici radyasyon altındaki uyarılma olayı ile ilgilidir. 1950'lerden sonra kuvars'ın optik ve elektriksel özellikleri incelenmeye başlandı ve o zamandan günümüzde birçok araştırmacı kuvars mineralinde termoluminesans özellikleri incelemiştir.

BÖLÜM 2. KATILARIN BAND YAPILARI VE ÖZELLİKLERİ

Bu bölümde çalışmamızın fiziksel temelini oluşturan termoluminesans olayının alt yapısı olarak kristallerde bağlanma ve bağ çeşitleri; termoluminesans açıklamamızda kullanacağımız band teorisi ve buna dayalı iletkenlik özelliklerini verilmektedir.

2.1. Kristallerde Bağlanma ve Bağ Çeşitleri

Atomların veya moleküllerin bir araya gelerek katıları oluşturmasında etkili olan kuvvetlere bağ kuvvetleri denir.

Atomlar arası ve atom içi bağlanmalarda etkili olan kuvvetler, atomları bir arada tutan çekme kuvveti ile atomların birbirine yakın olmasını önleyen itme kuvvetidir. Bu kuvvetlerin etkilediği A ve B gibi iki atomlu bir sistem gözönüne alınırsa, A atomunun potansiyel alanından dolayı B atomunun potansiyel enerjisi ,

$$V(r) = -\frac{\alpha}{r^n} + \frac{\beta}{r^m} \quad (2.1)$$

eşitliği ile hesaplanır. Burada r , atomlar arası uzaklığı, n ve m küçük tamsayı değerli sabitleri, α ve β 'da sabitler olarak $(-\alpha / r^n)$ çekme potansiyelini, (β / r^m) ise itme potansiyelini temsil eder. Atomik kuvvet ise,

$$F(r) = -\frac{dV}{dr} = -\frac{n\alpha}{r^{n+1}} + \frac{m\beta}{r^{m+1}} \quad (2.2)$$

eşitliği ile verilir.

Kristalin bağlanma enerjisi ise, aynı elektron düzenini koruyacak şekilde kristali serbest ve yüksüz atom bileşenlerine ayırmak için verilmesi gereken enerji olarak tanımlanır.

Bağlanması türlerindeki farklılıklar, maddeye farklı özellikler kazandırır. Kazandırdığı özelliklere bağlı olarak bu bağ çeşitleri dört bölümde incelenir (Nicols and Vervolin 1966).

2.1.1. İyonik Bağ

Bu bağ, iki atomun bir veya daha fazla elektronunun komşu atoma geçerek negatif ve pozitif yüklü iyonlar oluşturmasıyla meydana gelir. Örnek olarak sodyum klorür (NaCl) kristali verilebilir. Bu kristalde iyonik bağ, sodyumun bir elektronunun klor tarafından alınarak sodyumun (+), klorun (-) değerlikli olmasıyla açıklanır ve iki iyon arasındaki bağlanma enerjisi yaklaşık 6.13 eV' dur. Bu zıt yüklü iyonlar arasındaki etkileşme elektrostatik kuvvet şeklinde olup yük dağılımları komşu atomlarla etkileşikleri bölgeler dışında küresel simetri gösterir.

2.1.2 Kovalent bağ

Aynı veya farklı atomların elektron çiftlerinin birbirine bağlanması ile oluşur. Atomlar arasında elektron alışverişi olmadığı için iyonik bağ oluşmaz. Bu elektronlar, bağlanan atomların birine değil, ikisine birden aittir. 4A grubundaki bütün yarıiletken elementler (karbon (C), silisyum (Si), germanium (Ge), vs.) ve elmas kovalent bağlı kristallere örnek olarak verebilir. Elmasın yapısındaki her karbon atomu, kendisine en yakın dört atom ile 109° 'lik açılarla bağlanır. Bu atomların bağlanma enerjileri 7.3 eV olarak verilmektedir.

Bazı kristalleri tamamıyla iyonik veya kovalent olarak sınıflandırmak olanaklı değildir. Kuvars'da görüldüğü gibi bu katılar ara karakterli bağlara sahiptir.

2.1.3 Metalik bağ

Metallerin en dış yörüngesinde bulunan valans elektronlarının sayısı çok azdır ve zayıf olarak çekirdeğe bağlıdır. Bu bağlanma sonucu sıkı kovalent bağ oluşturamazlar. Bundan dolayı metallerin valans elektronları, pozitif iyonların oluşturduğu potansiyel içinde serbestçe haraket eden bir gaz bulutu olarak düşünülebilir. Metallerin iletken

olma özelliği, bu serbest elektron bulutunun varlığı ile açıklanır. Elektron bulutu ile pozitif yüklü iyonlar arasında Coulomb elektrostatik etkileşmesi meydana gelerek metalik bağ oluşur. Örnek olarak lityum atomunun metalik bağlanması verilebilir.

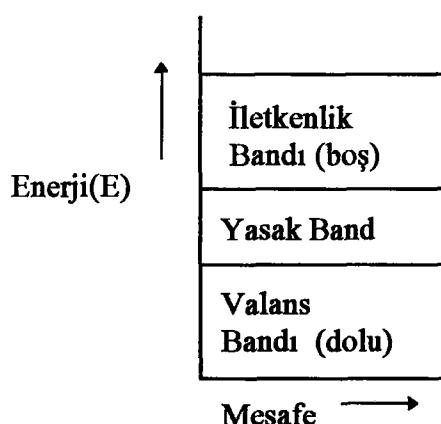
2.1.4 Van der Waals bağı

Bu bağ, iki atomun son yörüngelerindeki elektronların zayıf dalgalanmalarından oluşan dipollerinin zayıf etkileşmesi sonucu oluşur. İyonik ve kovalent bağdan daha zayıftır. Kristal ortamındaki elektron dağılımı serbest atomdaki elektron dağılımından farklı değildir. Van der Waals bağı birçok organik molekülde ve asal gazda görülür (Durlu 1992).

2.2 Katıların Band Teorisi

Katı yapılar içinde atomlar veya moleküller, kısa mesafede periyodik olarak yerleşiklerinde kristalleri oluştururlar. Kristaller içinde atomların bulunabileceği izinli ve izinsiz (yasak) enerji bandları bulunur.

İzinli enerji bandları ikiye ayrılır (Şekil 2.1). Bunlardan valans (değerlik) elektronlarının yer aldığı enerji bandına valans bandı, valans bandının üstünde yer alan ve tümü ile boş olan enerji bandına ise iletkenlik bandı denir. İzinli olmayan banda ise yasak enerji band aralığı denir ve kristal içerisinde valans bandı ile iletkenlik bandı arasında bulunur (Şekil 2.1).

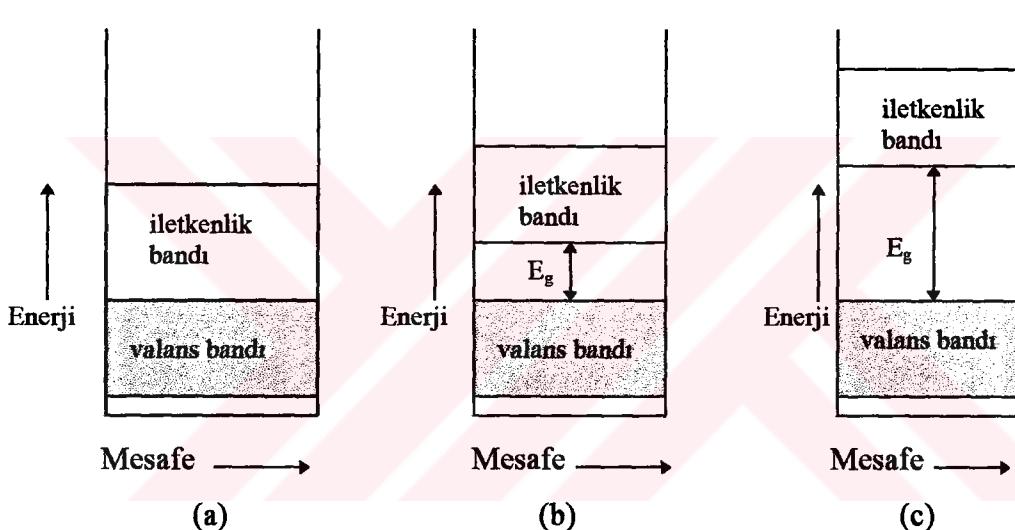


Şekil 2.1. Bir katıdaki iletkenlik ve valans bandlarının gösterimi

2.2.1. Katılarda iletkenlik ve yalıtkanlık

İzinli ve izinli olmayan bandlar katı yapıların farklılaşmasına neden olurlar. Eğer izinli enerji bandları valans elektronlarıyla tamamen dolu veya tamamen boş ise, kristal yalıtkan gibi davranır. Yalıtkanlarda dolu bir bandla (valans bandı) bir sonraki boş band (iletkenlik bandı) arasındaki yasak enerji aralığı (E_g), bir elektronun geçemeyeceği kadar genişir (Şekil 2.2.c). Bu yüzden ısı ve elektriği iletmezler.

İzinli enerji bandları içine geçmiş ve kısmen dolu iki band gibi davranırsa kristal iletken olur (Şekil 2.2.a). Buna göre tüm metaller iletkendir, ısı ve elektriği iletirler.



- Şekil 2.2. a) Bir iletkenin band yapısı
b) Bir yarıiletkenin band yapısı
c) Bir yalıtkanın band yapısı

2.2.2. Katılarda yarıiletkenlik

Mutlak sıfır sıcaklığında ($T=0^0$ K'da) iletkenlik bandı tamamen boş olan ve dolu valans banddan bir elektronun geçebileceğii bir E_g enerji aralığıyla ayrılan katılara yarıiletken denir (Şekil 2.2.b). Valans bandındaki bir elektrona, iletkenlik bandına çıkmaya yetecek kadar bir enerji verilmeme elektriksel iletkenlik sağlanmaz, katı bir yalıtkan olarak davranışır. Gerekli uyarılma enerjisi, yasak enerji aralığının ölçüsüdür. Bu enerji optik, ısisal veya mekanik yolla sağlanabilir.

Valans bandında bulunan elektronlar yeterli miktarda bir enerji alarak uyarıldıkları zaman, valans band sınırından yasak enerji bölgesine, oradan da iletkenlik band sınırına geçerler ve geride, valans bandında boşluklar bırakırlar. Boşluklar, bir elektriksel veya manyetik alan içerisinde artı elektron yüküne ($+e$) sahipmiş gibi davranışırlar ve elektronlarla birlikte elektriksel iletkenliğe katkıda bulunurlar.

Genel olarak iki tip yarıiletken vardır. Bunlar;

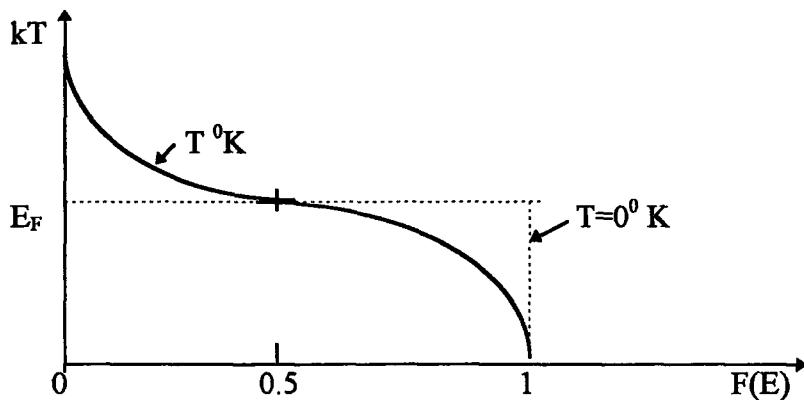
- 1) Has yarıiletkenler: Saf germanyum veya silisyum içinde termal yolla elde edilen boşluklar ve elektronlara sahip yarıiletkenlerdir.
- 2) Katılım yarıiletkenler: Has yarıiletkenlere periyodik tablodaki III. veya V. grup elementlerin (boşlukları veya elektronlarının) eklenmesiyle elde edilen yarıiletkenlerdir.

Birim hacimdeki elektron veya boşlukların sayısı, yarıiletkenlerin önemli bir özelliğidir ve onun elektriksel iletkenliğini tayin eder. Bu yüzden, yasak enerji aralığına bağlı olarak, has yarıiletkenlerin elektron veya boşluk konsantrasyonunu bulmak gerekmektedir. Yarıiletkenlerde, iletkenlik bandındaki elektronlarla valans bandındaki boşlukların konsantrasyonu denge halindedir. Bu istatistiksel denge Fermi seviyesi ile sağlanır. Fermi seviyesi gerçekte varolmayan ancak yasak enerji bölgesinin herhangi bir yerinde bulunduğu kabul edilen bir enerji düzeyidir. Herhangi bir nedenle elektron veya boşluk sayıları artarsa, dengeyi sağlamak için Fermi seviyesi sırasıyla iletkenlik veya valans bandına doğru yaklaşır.

Fermi faktörü olarak bilinen ve $F(E)$ ile gösterilen E enerjili bir düzeyin, bir katı yapı içinde elektronlarla dolma olasılığı

$$F(E) = \frac{1}{1 + e^{(E - E_F)/kT+1}} \quad (2.3)$$

ifadesi ile verilir. Burada E_F Fermi enerjisini, k Boltzman sabitini, T ise mutlak sıcaklığı ifade eder. $F(E)$ Fermi fonksiyonunun (kT) enerjisiyle değişimi Şekil 2.3' de görülmektedir (Croissette 1965).



Şekil 2.3. İki farklı sıcaklık için enerjinin (kT) bir fonksiyonu olarak Fermi faktörü

Denklem (2.3)'e göre Fermi fonksiyonu $T = 0^0\text{K}$ 'da iki değer alır. Bunlar $E > E_F$ için,

$$F(E) = \frac{1}{1 + e^{-\infty}} = 0 \quad (2.4)$$

$E < E_F$ için,

$$F(E) = \frac{1}{1 + e^{-\infty}} = 1 \quad (2.5)$$

şeklindedir. Buradan $F(E)$ değerinin, Fermi enerjisinin altındaki bütün enerji değerleri için 1 değerini aldığı, üstündeki bütün enerji değerleri için 0 değerini aldığı görülür. Eğer $T \neq 0^0\text{K}$, Denk (2.3)'de yerine konulursa, değeri $E = E_F$ için,

$$F(E) = \frac{1}{1 + e^0} = \frac{1}{2} \quad (2.6)$$

elde edilir. Fermi seviyesinin yerini bulmak için

$$\int n(E)dE = \int N(E)F(E)dE \quad (2.7)$$

denklemi kullanılabilir. Burada $n(E)$ elektronlarla dolu durumların sayısı, $N(E)$ 'de durum enerji yoğunluğudur. Bu integralin sınırları, bir bandın en üst ve en alt seviyeleri olup band içindeki elektronların toplam sayısını gösterir.

Has yarıiletkenler olan III. ve V. grup elementleri aralarında oluşan kovalent bağlı bileşiklerin valans elektronu elektriksel alan veya ıslı enerji etkisiyle uyarılırlar ve σ iletkenlik, (-) yüklü elektronların sağladığı σ_n ile, (+) yüklü boşluklarının sağladığı σ_p iletkenliklerin toplamına, yani

$$\sigma = n (\mu_n + \mu_p) q \quad (2.8)$$

eşit olacaktır. Burada; n , elektron veya boşluk yoğunluğu (has yarıiletkenlerde elektronlarla boşluklar çiftler halinde bulunduğu için yoğunlukları eşittir ($p=n$)) ; μ_n , μ_p elektron ve boşlukların mobiliteleri; q 'da elektrik yüküdür. Has yarıiletkenlerde elektronlar ve boşluklar yasak enerji aralığında bulunmazlar ve Fermi seviyesinin yeri sıcaklığa bağlı değildir ve

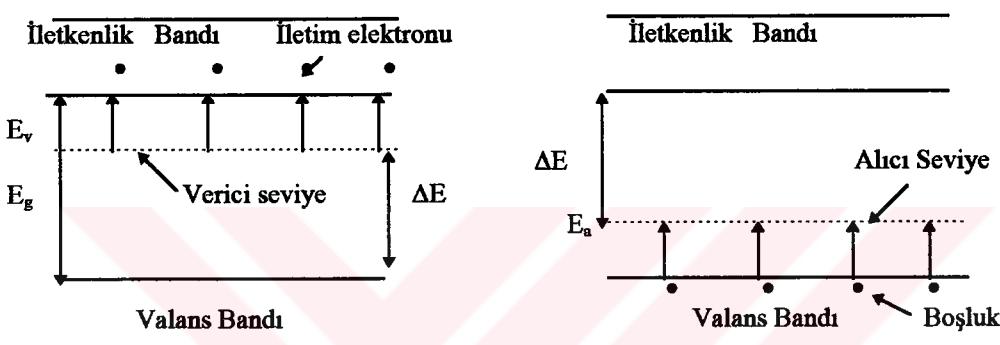
$$E_F = (E_1 + E_2) / 2 \quad (2.9)$$

bağıntısından görüldüğü gibi yeri E_g 'nin tam ortasındadır. E_1 burada iletkenlik bandındaki enerji seviyelerini, E_2 ise valans bandındaki enerji seviyesini gösterir. Bu enerji seviyeleri, yasak enerji aralığının ortasına göre simetrik yerleşmişlerdir.

Katkılı yarıiletkenlik, yarıiletken atomun yerine katkı atomu adı verilen ve genellikle periyodik tabloda III . veya V. grupta yer alan elementlerin atomlarının birinin geçmesiyle oluşur. Eğer katkı atomu V. grubun elementlerinden birisi ise (As, P ve Sb gibi), bu elementlerin atomlarının beş valans elektronu vardır. Bu atomlar saf germanyum veya silisyum has yarıiletkenleriyle 4 kovalent bağ yaparak, bağların dışında bir elektron bırakırlar. Böyle bir yarıiletken n -tipi (negatif akım taşıyıcısı) veya verici (donor) yarıiletken denir ve elektrik akımını negatif yükler oluşturur. Öte yandan katkı atomu III. grup elementlerinden biri ise (B, Al, Ga ve In gibi) atomun üç valans elektronu vardır. Bu atomlar saf germanyum veya silisyum kristali ile 4 kovalent bağ yaparak, bağların tamamlanması için diğer bağdan bir elektron alırlar. Elektron alınan bağda geride bir boşluk kalır. Bu tip yarıiletkenlere ise p -tipi (pozitif akım taşıyıcısı) veya alıcı (acceptor) yarıiletkenler denir ve elektrik akımını boşluklar yani pozitif yükler oluşturur.

Katkılı yarıiletkenlerde, katkılar yasak enerji aralığında bulunabilirler. Bu durum band modeline göre mümkün değildir. Fakat bunlar safsızlık durumunu belirttiği için

E_g aralığına yerleşebilirler. Vericilerin, beşinci elektronunun enerji seviyesi, iletkenlik bandının tam altındadır ve valans banddan E_v enerji aralığı kadar yukarıdadır. İletim elektronu adı verilen beşinci elektron $\Delta E = E_g - E_v$ kadar bir enerji alarak iletkenlik bandına geçer ve iletimi sağlar (Şekil 2.4). Aynı şekilde alıcıların, diğer banddan bir elektron alarak geride boşluk bırakın enerji seviyesi, valans bandının tam üstündedir ve valans banddan E_a enerji aralığı ile ayrıılır. Bu elektron, $\Delta E = E_g - E_a$ farkına eşit enerji ile valans bandındaki elektron iyonize olarak, boşluk enerji seviyesine geçer.



Şekil 2.4 Verici ve alıcı enerji seviyelerinin yasak enerji aralığındaki yeri

Vericilerde σ_v iletkenliği, N_v^+ verici elektronlarının iyonize olan yoğunluğunu, μ_v verici elektron mobilitesini ve q elektrik yükünü göstermek üzere

$$\sigma_v = \mu_v N_v^+ q \quad (2.10)$$

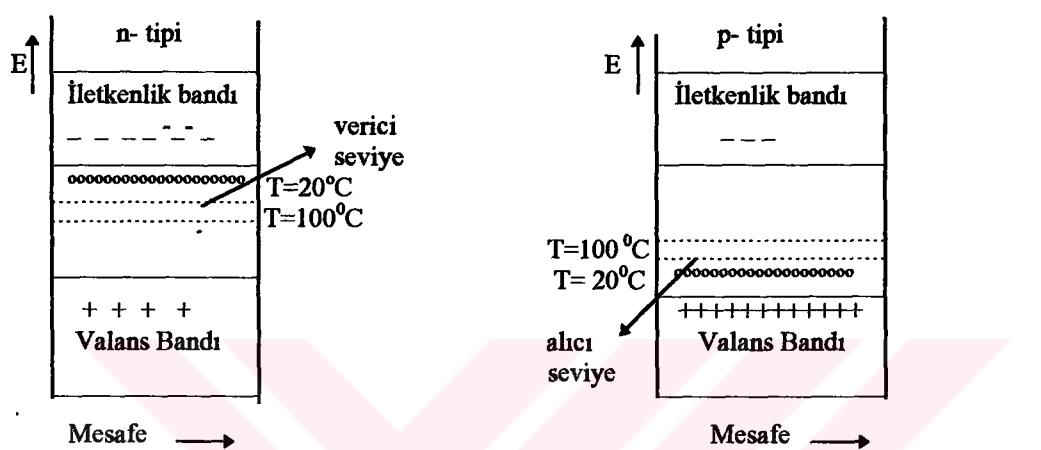
denklemiyle verilir. Elektriksel alan veya sıcaklık artırılsa N_v^+ verici yoğunluğu artar ve sınır halinde N_v maksimum katkı yoğunluğuna eşit olur.

Alicı yarıiletkenlerde σ_a iletkenliği, N_a^- alicı boşlukların elektronlarla dolma yoğunluğunu, μ_a alicı boşluk mobilitesini ve q elektrik yükü ise σ_a iletkenliği

$$\sigma_a = \mu_a N_a^- q \quad (2.11)$$

denklemiyle verilir. Elektriksel alan veya sıcaklık artırırsa, N_a^- alicı yoğunluğu artar ve bütün boşlukların dolduğu sınır halinde $N_a^- = N_a$ olur.

İletkenlik bandındaki elektron sayısı valans bandındaki elektron sayılarından fazla olup verici yarıiletken oluşursa, Fermi enerji seviyesi yasak enerji aralığının ortasının üstüne kayar. Valans bandındaki elektron sayısı iletkenlik bandındaki elektron sayılarından fazla olup alıcı yarıiletken oluşursa, Fermi enerji seviyesinin yeri yasak enerji aralığının ortasının altına kayar. Alıcı ve verici yarıiletkenlerin sıcaklıkla değişimi Şekil 2.5'de verilmektedir.



Şekil 2.5. Alıcı ve verici yarıiletkenler için Fermi enerji seviyesinin sıcaklıkla değişimi

BÖLÜM 3. LÜMİNESANS ve TERMOLÜMİNESANS OLAY

Bu bölümde çalışmamızın ana konusu olan termolüminesans olayı incelenmektedir. Bu kapsam içinde önce lüminesans olay tanıtılmış, ardından termolüminesans olay ve band teorisi ile buna bağlı olarak termolüminesans kusurların, tuzaklar ve yeniden birleşme merkezlerinin meydana gelişleri açıklanmıştır. Daha sonra termolüminesans modellerine degenilmiştir. Son olarakta çalışmamızda tuzak enerjisinin ve frekans faktörünün belirlenmesinde kullanacağımız yöntem olan farklı ısıtma hızları yöntemi verilmiştir.

3.1 Lüminesans Olayı

Atomlar ve moleküller taban enerji seviyesinden uyarılmış enerji seviyesine dışarıdan bir enerji alarak geçiklerinde devamlı olarak bu seviyede bulunamazlar. Üzerlerine aldıkları enerjiyi dışarıya vererek kararlı durum olduğu farz edilen taban enerji seviyesine geçmek isterler. Bu enerji seviyesine dönerken de fazla enerjisinin bir kısmını ışık (genellikle görünür ışık, fakat UV ve IR'de olabilir) şeklinde dışarıya verirler. ışık açığa çıkarılmasıyla oluşan bu olaya "lüminesans" denir.

Lüminesans, uyarılma enerjisinin farklılığına göre çeşitli kısımlarda incelenir:

- 1.Elektrolüminesans: Uyarılma olayı, atom veya moleküle elektrik alan uygulanması ile meydana geliyorsa, bu lüminesans türüne elektrolüminesans denir.
- 2.Fotolüminesans: Ultraviyole ışısını atom veya molekülün soğurmasıyla oluşur. Floresans, fosforesans ve Raman ışıması bu lüminesans olayı içinde incelenir.
- 3.Sonolüminesans: Yüksek frekanslı ses dalgaları veya fononlarla meydana gelen lüminesans olayıdır.
- 4.Katodolüminesans: Bu lüminesans türü elektronların kristallerle çarpışmasıyla oluşur.
- 5.Tribolüminesans: Bir fosfor veya kristalin parçalanması sırasında görülen lüminesans şeklidir. Kristal kırılırken oluşan elektriksel deşarj sonucunda görülür.

6.Radyolüminesans: Yüksek enerjili parçacıkların; kozmik ışınlardan, hızlandırıcılarından, radyoaktif maddelerden (γ - ışınları, β parçacıkları, α -ışınları) veya diğer kaynaklardan elde edilerek oluşan lüminesans olayına denir.

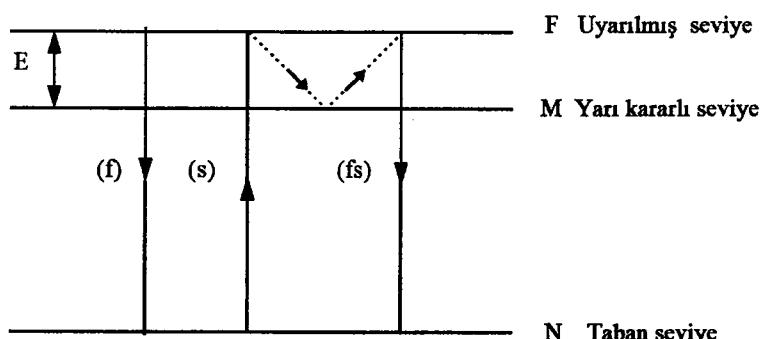
7.Kemilüminesans: Bir fosfor veya organik molekülün kimyasal reaksiyonu sırasında serbest kalan enerjinin lüminesans ışığı halinde yayılmasıdır.

8.Biyolüminesans: Kimyasal lüminesansın özel bir çeşididir (Örneğin ateş böceği, deniz ışıldaması gibi). Biyolojik sistemlerde gözlenen lüminesans olayıdır.

9.Termolüminesans: Bazı katı maddeler ısıtılma ile ışık yayarak lüminesans özellik gösterir. Bu ışımaya termolüminesans denir.

3.1.1. Floresans ve fosforesans olayı

Lüminesans, atom ve moleküllerin uyarıldıkları seviyelerde kalma sürelerine bağlıdır. Uyarılma seviyelerinde elektronun kalma süresi için karakteristik değer τ_c , 10^{-8} s olarak belirlenmiştir. Moleküle gelen enerjiyle elektronun uyarılmasından sonra 10^{-8} s içinde meydana gelen lüminesans ışımaya floresans; 10^{-8} s' den sonra oluşan ışımaya ise fosforesans denir (Garlick 1949, Mc Keever 1985). Floresans olayı enerji band modeli ile açıklanabilir ve sıcaklığı bağlı değildir (Fonda 1939).



Şekil 3.1 Floresans ve fosforesans oluşumu ve enerji seviyeleri

(s): soğurma süreci (f): floresans olayı (fs): fosforesans olayı

Fosforesans olayı ise, enerji band modelinde yasak enerji aralığı içinde bir yarı kararlı enerji seviyesinin varlığı kabul edilerek açıklanır ve sıcaklığı üstel olarak bağlıdır (Chen and Kirsh 1981) (Şekil 3.1). Fosforesans olayında uyarılan bir

elektron, uyarılmış enerji seviyesinden (F) yarı kararlı enerji seviyesine (M) geçerek tuzaklanır ve yeterli bir E enerjisi alıncaya kadar bu seviyede kalar (Prigsheim and Vogel 1946). E enerjisi alduğında ise tekrar uyarılmış enerji seviyesine (F) ve buradan da taban enerji seviyesine (N) ışına yaparak döner. Böylece, gecikmeli gözlenen bu fosforesans olayında, yarı kararlı seviyede elektronun bulunma süresi;

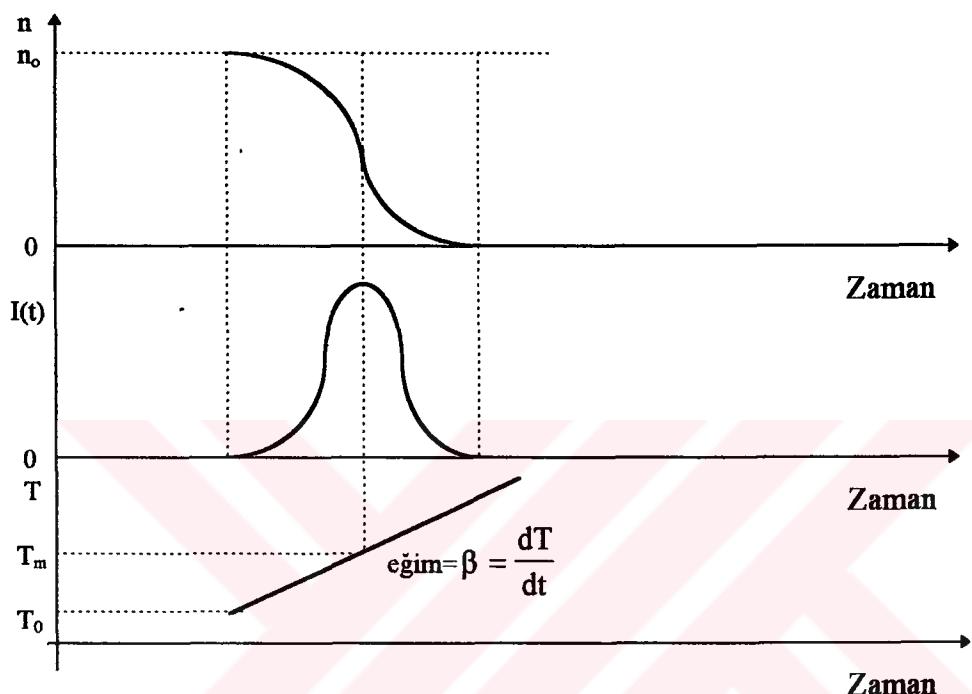
$$\tau = s^{-1} \exp(E/kT) \quad (3.1)$$

ile verilir. Burada; k Boltzman sabiti, s frekans faktörü, E , (M) ve (F) enerji seviyeleri arasındaki tuzak derinliği olarak adlandırılan enerji farkı, T ise mutlak sıcaklığıdır.

3.2. Termolüminesans Olay

Yarı kararlı tuzakta tuzaklanmış elektronların bulunma süresi τ idi. Bu süre sıcaklığa üstel olarak bağlıdır. Denklem(3.1) ile belli bir T_0 sıcaklığında, E ve T değerlerinin belirlendiği çok küçük τ değerleri için lüminesans ışına kolaylıkla gözlenebilir. Tuzak yeterince derinse $E \gg kT_0$ ’dır ve τ değeri çok büyütür. Bu durumda elektron ya yarı kararlı tuzak seviyesinde sonsuza kadar tuzaklanmış kalacak yada T_0 ’da çok küçük bir olasılıkla ($\frac{dn}{dt} = -\frac{n}{\tau}$) eşitliğinin uygun olarak uyarılacaktır. Örneğin oda sıcaklığında ($T_0 = 298K$) tuzak derinliği $E=1.5eV$ ve buna bağlı olarak $s=10^{12}s^{-1}$ için $\tau = 7.3 \times 10^5$ yıl olur. Bunun fiziksel anlamı, oda sıcaklığında veya daha düşük sıcaklıklarda bu tuzak ile ilgili bir lüminesans ışına gözlenmezken, $\beta = dT/dt$ doğrusal oranına bağlı olarak ortam sıcaklığının artırılmasıyla, $I(t) = n/\tau$ biçiminde lüminesans bir ışına elde edilebilecek demektir. T_0 ortam sıcaklığı arttıkça, elektronların tuzaklarda kalma süresi τ azalır ve tuzaklardan elektronlar kurtulup yeniden birleşmeaptıkça ışına şiddeti önce artar, tuzağın boşalması ile $I(t)$ azalmaya başlar ve sıcaklığa bağlı ışına şiddeti eğrisi pik şeklinde oluşur. Lüminesans ışıyla sağlanmış olduğundan bu olaya Termolüminesans (TL) denir. Şekil 3.2’de tuzaklanmış elektronların sayısının ve TL ışına şiddeti $I(t)$ ’nin zamanla değişimi gösterilmiştir. Çoğunlukla bu tip deneylerde sıcaklık zamanla doğrusal olarak artırılır. Sıcaklığın zamanla değişimi $T = T_0 + \beta t$ eşitliği ile verilir. TL ışına eğrisi (glow curve) sıcaklığın

fonksiyonu olarak elde edilen ışma şiddetinin eğrisidir. Genellikle tuzak enerji değeri büyükçe pikin oluşma sıcaklığı artar. Eğer değişik enerji seviyelerinde tuzaklar bulunuyorsa, ortaya çıkan ışığın sıcaklığa bağlı olarak çizilmiş eğrilerinde birden fazla tepe noktası gözlenir.



Şekil 3.2 Termolüminesans ışma şiddeti $I(t)$ ile tuzak merkezlerinde tuzaklanmış elektron yoğunluğunun zamanla değişimi

Herhangi bir madde için tepe noktalarının konumu sabit olup tepenin altında kalan alan, tuzaklardaki elektron sayısıyla, başka bir deyişle maddeye, aktarılan radyasyon dozu miktarıyla orantılıdır. Şekil 3.2'de termolüminesans piki sabit ısitma hızında zamana bağlı olarak çizilmiştir. Uygun derinlikteki bir tuzağın termolüminesans ışması, madde ışınlandığı sürece her zaman elde edilebilir. Tuzaklardaki elektronların bulunma süreleri birkaç dakikadan binlerce yıla kadar değişimdir. Buna karşın ışınlama ile termolüminesans okuma arasındaki süre güneş sisteminin yaşı olan 4.6×10^9 yılı geçemez (Mc Keever 1985). Bütün katılar, sıvılar ve gazlar ıstıldıklarında ışık yayarlar. Bu sırada gözlenen ışığın rengi ve şiddeti cisim sıcaklığına bağlıdır. Bu olaya ısisal-ışınım (thermal radiation) denir. Bazı katılarda gözlenen termolüminesans ışımı ise bu tür ışınmalardan farklıdır. Termolüminesans

ışırma ısı uyarılması sonunda gözlenir, ancak gözlenen ışık incelenen maddenin yapısına, çevresindeki ve içindeki radyoaktif maddelerden almış olduğu radyasyon dozuna bağlıdır.

3.3. Band Teorisine Göre Termolüminesans Olay

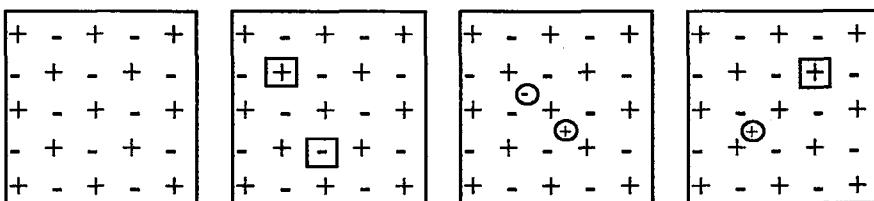
Termolüminesans olayı, katıların enerji band modeline göre açıklanabilmektedir (Zhang et al. 1993). Bundan dolayı kristal yapılı maddelerin termolüminesansa neden olan özelliklerini açıklamada enerji band modeli kullanılacaktır.

3.3.1. Termolüminesans kusurların meydana gelişisi

Termolüminesans olayının meydana geldiği maddeler, alkali halojenürler, toprak alkali sülfatlar, metal oksitler, metal sülfitler ve karışık bileşikler olarak bilinir. Bu maddelerde termolüminesans olayının oluşumunu incelemek için kristal yapılarını bilmek gereklidir. Saf kristaller kusursuz yapılarını, oluşumları sırasında veya dışarıdan ışınlamaya tabi tutulduğularında bozarlar. Böylece kristallerde atomik ve elektronik kusurlar oluşur. Bu kusurlar kristallerin yük denkliklerini bozmadan maddelerin farklılaşmasına neden olurlar. Bu kusurların pek çok çeşidi vardır. Örneğin bir atomun olması gereği yerde bir boşluk olabileceği gibi birden fazla atomda olabilir, yahut bir atom safsızlık dediğimiz başka cinsten bir atomla yer değiştirmiş olabilir.

İdeal bir alkali halojenür olan ve iyonik kristal yapısındaki sodyum klorür (NaCl), kristal yapısındaki kusurların oluşumunu incelemek için örnek olarak verilebilir. Yüzey merkezli kübik yapıda bulunan sodyum klorür kristalinin yük denkliği, her alkali ve her halojen iyonunun kendisinden eşit mesafede bulunan altı halojen (klor) ve altı alkali (sodyum) iyonunun bulunması ile sağlanır. Bu kristalde oluşacak kusurlar, yük denkliğini bozmayacak olan noktasal örgü kusurlarıdır.

İdeal sodyum klorür kristalinin iki boyutlu kristal yapısı Şekil 3.3.a'da verilmiştir.

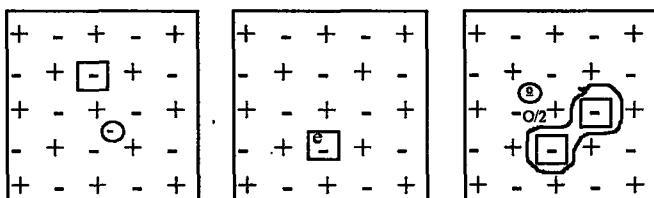


(a)

(b)

(c)

(d)



(e)

(f)

(g)

+ : Alkali iyon

+ : Alkali iyon boşluğu

⊕ : Düzensiz alkali iyonu

e : Elektron

o : Boşluk

- : Halojen iyonu

- : Halojen iyon boşluğu

○ : Düzensiz halojen iyonu

e : F- merkezi

⊕ : H- merkezi

O/2 : V_k⁻ merkezi

Şekil 3.3. İdeal ve kusurlu NaCl kristalin iki boyutlu örgü yapısının karşılaştırılması

Bu tür kristallerde en çok görülen kusurlardan olan Schottky tipi kusurlar, kristal içindeki pozitif ve negatif iyonların yerlerinden çıkararak kristal örgüde boşluklar meydana getirmesiyle oluşur (Şekil 3.3.b). Saf bir kristalin elektrik yükü bakımından nötr olabilmesi için eksilen alkali iyon sayısı kadar halojen iyon boşluklarında olması gereklidir. Aynı şekilde eğer ara atomları alkali ve halojen iyonlarının arasına girerlerse, bunların oranının eşit olması gereklidir (Şekil 3.3.c). Alkali ve halojen iyonlarının yerlerinden çıkararak örgü aralarına yerleşip geride boşluklar bırakması Frenkel tipi kusurlardır. Alkali bir iyonun örgü noktasını bırakıp bir ara atomu olarak örgü arasına geçmesi ile pozitif bir frenkel çifti (Şekil 3.3.d), halojen bir iyonun örgü noktasını bırakıp bir ara atomu olarak örgü arasına geçmesi ile de negatif bir frenkel çifti (Şekil 3.3.e) oluşur.

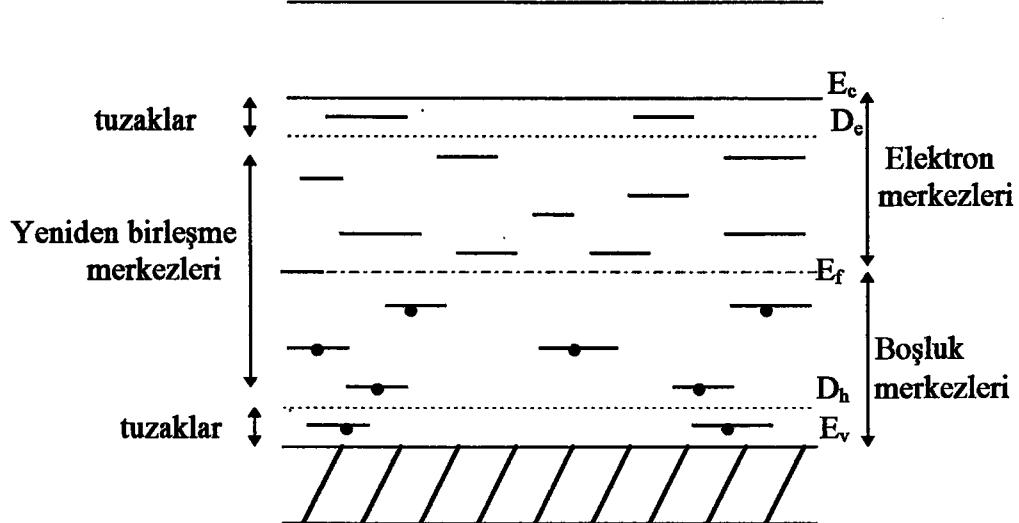
NaCl kristalinde, elektronlarla dolu olan baddan enerji karakterli ışınlarla yapılan ışımalar sonucu (örneğin x ve γ ışınları) serbest kalan alkali metal atomunun değerlik

elektronu, bir Cl^- iyonunun oluşturduğu anyon boşluğuna çekilerek tuzaklanırsa, elektron kristali renklendirir (Şekil 3.3.f). Boşluğa yerleşmiş fazla bir elektronu bulunan negatif iyon boşluğuna almancada renk merkezi anlamına gelen “Farbzentrum” kelimesinin baş harfini simgelemek üzere “F-merkezi” adı verilir. Bu yakalanan elektronun elektronik iletkenliğe bir katkısı olmaz. F-merkezinde tuzaklanmış olan bir elektron, işınlama veya kristal iyonları etrafındaki termik titreşimler yardımıyla yeterli enerji aldığı takdirde, tuzaktan kurtulur. Kurtulması için gerekli olan bu enerji (Cl^-) iyonunun valans elektronlarından birini serbest hale getirmek için gerekli enerjiden daha azdır ve yakalayan anyon boşluğunun enerji seviyesi, yasak band aralığında yer alır.

Alkali halojenürlerde oluşan diğer bir kusur şekli ise, bir çift katyon boşluğunun serbest boşuklar için iyi bir tuzak oluşturmasıdır (Şekil 3.3.g). F-merkezinin asimetrik benzeri olan bu merkez V_k -merkez olarak adlandırılır (Seitz 1946).

Kristaldeki iki değerlikli anyon boşluğu pozitif yük, katyon boşluğu ise negatif yük gibi davranışır. Sodyum iyonunun (Na^+) kristal örgüde bulunması gereken yerden herhangi bir nedenle uzaklaşması ile oluşan katyon boşukları, pozitif yükün bir eksilmesi ile bitişik komşu (Cl^-) iyonundan bir elektronu serbest duruma getirmek için mevcut enerjide bir azalmaya neden olur ve yasak band aralığında lokal bir boşuk enerji seviyesi oluşturur. Bu boşuk seviyelerine boşuk merkezleri denir. Band aralığındaki bu boşuk seviyesinin konumu, bir elektronu serbest hale getirmek için gerekli enerji miktarı kadardır (Şekil 3.4)(Mc Keever 1985).

Katyon boşuklarının enerji seviyeleri Fermi seviyesi altında elektronlarla dolu ve boşukları tuzaklanmaya hazır yeniden birleşme merkezleridir. Anyon boşuklarının enerji seviyeleri ise, Fermi enerji seviyesinin üzerinde bulunan elektron merkezleridir. Bu seviyeler ise elektronları yakalamaya hazır elektron tuzak merkezleridir. Aynı açıklamalar kristal örgüsünde, örgü noktalarına ve örgü aralarına girmiş katyon ve anyon safsızlık iyonları için de söylenebilir. Elektron ve boşuk tuzaklanma seviyeleri içeren bir yalıtkan veya yarıiletken için enerji band diyagramı şekilde görülmektedir (Şekil 3.4).



Şekil 3.4. $T = 0^{\circ}\text{K}$ 'de yalıtkan özellik gösteren yarıiletken kristalin boşluk ve elektron merkezlerinin, tuzak ve yeniden birleşme merkezlerine göre durumu. Fermi enerji seviyesinin altındaki seviyelerin hepsi elektronlarla dolu iken üstündeki seviyelerin hepsi boştur.

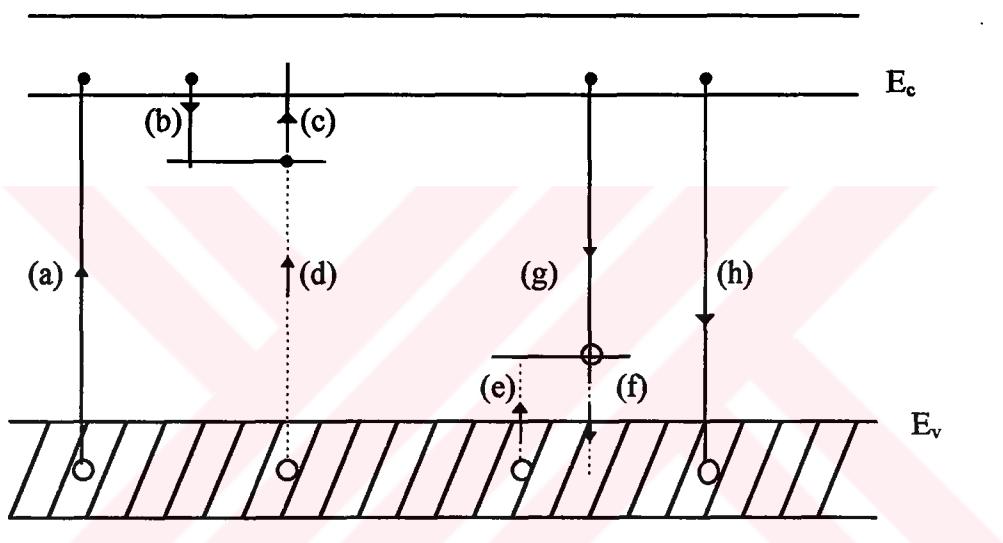
3.3.2. Tuzaklar ve yeniden birleşme merkezleri

Lüminesans olayları, alıcı (acceptor) ve verici (donor) enerji seviyelerindeki elektron ve boşlukların sayısal yoğunluğunun değişmesine dayanır. Bu değişim, bu enerji seviyelerinden diğerine elektronik geçiş ile olur. Şekil 3.5'de elektron ve boşluğun yaptığı bazı elektronik geçişler görülmektedir.

Madde içindeki atomun valans elektronlarından biri yeterli enerji alırsa, kristal örgü içerisinde serbestçe dolaşmasına karşılık gelen iletkenlik bandına geçebilir ((a) geçisi) Bu geçiş, iyonlaşdırma meydana getiren bir enerji soğrulması ile olur. İletkenlik bandındaki her serbest elektron için, geride valans bandında bir boşluk kalır.

Bu elektron boşluk çiftlerinin her biri kusur merkezlerine ulaşıp yerleşinceye kadar kristal içerisinde başı boş dolaşırlar. Elektron (b) ve boşluk (e) tuzaklanması geçişleriyle gösterilmiştir. Bunlar ısı veya optik uyarım ile tuzaklardan kurtularak kristal örgü içerisinde serbestçe dolaşabilirler ((c) ve (f) geçişleri). Serbest elektron

ve boşluk için, ikinci bir geçiş olanağıda bunların doğrudan birleşmesi ((h) geçisi), veya daha önce tuzaklanmış elektron ve boşluğun dolaylı olarak yeniden birleşmesidir ((d) ve (g) geçisleri). Bu yeniden birleşme olayları bir ışık ışınımına neden oluyorsa, buna lüminesans denir. Alıcı ve verici seviyeleri, tuzak veya yeniden birleşme merkezleri gibi davranışabilirler. Bunlar arasındaki temel fark, ısiyla uyarım ve yeniden birleşme olasılıklarının oranına bağlıdır. Şekil 3.5'de elektron tuzakları için, eğer (c) geçiş olasılığı (d) geçiş olasılığından büyük ise, bu seviyeye tuzak denir.



Şekil-3.5. Yarıiletkenler ve yalıtkanlarda görülen elektronik geçişler

- (a) iyonlaşma
- (b) elektron, (e) boşluk tuzaklanması
- (c) elektron, (f) boşluk kurtulması
- (d) elektronun, (g) boşluğun dolaylı yeniden birleşmesi
- (h) doğrudan yeniden birleşme olayları
- elektron \longrightarrow elektron geçisi
- boşluk ○ boşluk geçisi

Eğer (d) geçiş olasılığı (c) geçiş olasılığından daha büyük ise, bu enerji seviyesine yeniden birleşme merkezi denir. Benzer olarak boşluk merkezi için de (g) ve (f) geçisleri tanımlanabilir.

İşti alarak tuzaktan kurtulan elektronun kurtulma olasılığı (3.1) denklemindeki E/kT'ye üstel olarak bağlıdır. E tuzak derinliği, iletkenlik veya valans band sınırlarıyla tuzak arasındaki enerji farkıdır.

Belli bir sıcaklıkta küçük E değerli merkez, büyük E değerli merkezden tuzak olmaya daha yatkındır. Bu nedenle yeniden birleşme merkezleri yasak enerji bandının ortalarına doğru yer alırken, elektron ve boşluk tuzakları kıyılara daha yakındır (Bkz. Şekil 3.4). Ayrıca, yüksek bir sıcaklıkta tuzak olan merkez, düşük sıcaklıkta yeniden birleşme merkezi gibi davranışabilir.

Tuzak merkezlerinde tuzaklanması, yeniden birleşme merkezlerinde ise yeniden birleşme olasılıklarının farklı oluşu, belli bir sıcaklıkta alıcı ve verici seviyelerinde tuzaklanması ve yeniden birleşme olasılıklarının eşit olduğu bir kusur seviyesinin varlığını belirtmemizi gerektirir. Bunun için tuzak ve yeniden birleşme merkezleri arasında D derinlikli bir enerji seviyenin olduğu varsayılar. Öyleki, E enerjili bir merkez E<D için bir tuzak, E>D için yeniden birleşme merkezidir. Çünkü tuzak derinliği, elektronlar için alıcı seviye ile iletkenlik bandı arasındaki D_e seviyesiyle veya boşluklar için, valans bandı ile verici seviye arasındaki D_h seviyesiyle gösterilen enerji farkını belirtir (Bkz. Şekil 3.4).

Bir tuzak ile yeniden birleşme merkezi arasındaki farklılık, yalnızca merkezin tuzak derinliğine bağlı değildir. Bir ayırm seviyesinin tanımından gidilerek elektronlar için,

$$s_e \exp(-D_e/kT) = n_r A_r^n \quad (3.2)$$

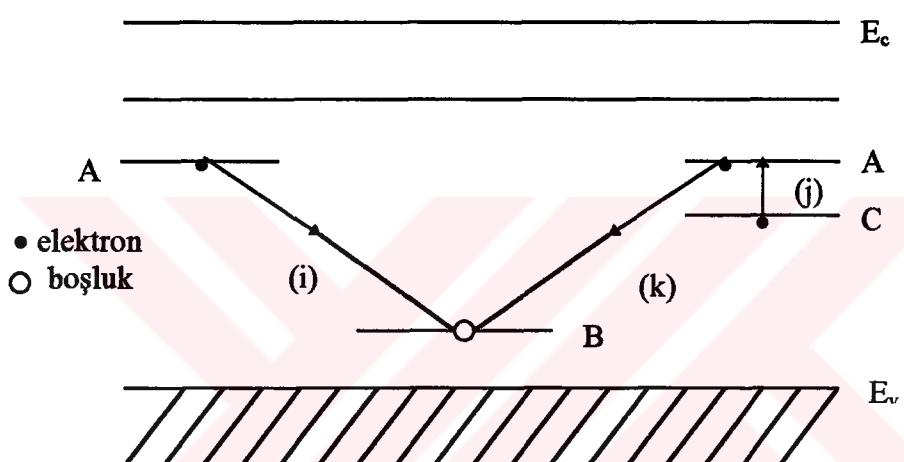
ve boşluklar için,

$$s_h \exp(-D_h/kT) = p_r A_r^p \quad (3.3)$$

eşitlikleri verilebilir (Mc Keever 1985). Bu eşitliklerde sol tarafları sırasıyla tuzaklanmış elektron ve boşluklar için birim zamanda ısı ile uyarılma olasılıklarını, s_e ve s_h ise ayırm sabitlerini göstermektedir. A_r^n ve A_r^p birim zaman ve birim hacimdeki yeniden birleşme geçiş katsayılarıdır. Böylece (3.2) ve (3.3)

denklemlerinin sol tarafları Şekil 3.5'deki (c) ve (f) geçiş olasılıklarını, denklemin sağ tarafı ise (d) ve (g) geçiş olasılıklarını vermektedir.

Birçok maddede elektron ve boşluk geçişleri iletkenlik ve valans bandını kullanmadan, yasak enerji aralığındaki alıcı ve verici enerji seviyelerini kullanarak doğrudan geçişler olarak gözlenmektedir. Bu tür geçişler lüminesans ve termolüminesans olaylarda önemlidir. Merkezden merkeze geçişin olabildiği bir örnek şekil 3.6'da gösterilmiştir.



Şekil 3.6. Bir yarıiletken veya yalıtkan kristalde iletkenlik veya değerlik bandlarını içermeyen elektron geçişleri

Bu geçişte elektron geçişleri dikkate alınmıştır. Benzer geçişler, boşluklar için de olabilir. Örneğin A seviyesinde tuzaklanmış elektron, B seviyesinde tuzaklanmış boşluk ile doğrudan yeniden birleşme yapabilir (Şekil 3.6 (i) geçisi).

Bu tip yeniden birleşme, A ve B seviyeleri aynı atoma sahip ise gözlenebilir. Eğer A ve B, örgü içindeki komşu atomlar arasında oluyorsa, (i) geçisi tünelleme olayı olarak kendini gösterir. Bu tip geçişlerin olduğu pek çok organik ve inorganik madde bilinmektedir (Visocekas et al. 1976, Hama et al. 1980, Mc Keever 1985, Charlebsy, 1981).

3.3.3. Yeniden birleşme olayları

Lüminesans olaylar, elektron ve boşluğun yeniden birleşmesi ile oluşur. Üç tip yeniden birleşme olayı vardır. Şekil 3.5'de görüldüğü gibi banddan banda (*h* geçisi), bandan merkeze ((d) ve (g) geçisi) ve şekil 3.6'da görüldüğü gibi merkezden merkeze (i) ve (k) geçişleridir. Bandan banda yeniden birleşmeye doğrudan geçiş, merkezle ilgili seviyeler arasındaki geçislere dolaylı geçiş denir. Lüminesans oluşması için yeniden birleşme, foton ışimalı olmalıdır. Bu bölümde doğrudan ve dolaylı geçiş veya ışimalı ve ışımasız geçiş (yeniden birleşme) adı verilen bu olaylar sırasıyla verilmektedir.

Safsızlık ve diğer kristal örgü kusurlarının bulunması nedeni ile, iletkenlik bandından değerlik bandına geçişlerde gözlenen lüminesans dalga boyunun beklenenden daha uzun ölçülmüş olması, yeniden birleşmenin bandan banda (doğrudan geçiş) değil, bandan merkeze (dolaylı geçiş) olduğunu göstermektedir. Dar band aralıklı kristallerde doğrudan geçiş daha çok gözlenirken, genellikle saf olmayan yalıtkan ve geniş aralıklı yarıiletkenlerde dolaylı geçiş gözlenir.

Doğrudan geçişte uyarılmış elektron, ışimalı olmayan bir geçişle band aralığına karşılık gelen enerjisini ısı olarak yarmak için aynı anda birçok fononun oluşmasını gerektirir. Diğer taraftan elektronun uyardırma enerjisini yalnız fononlarla etkileşerek tümü ile kaybetmesi olanaksızdır. Bu nedenle doğrudan geçişler foton ışimalıdır. Dolaylı geçişte kaybolan enerji, band aralığı enerjisinden çok daha düşüktür ve ışimalı (fotonlu) veya ışımasız (fononlu) yayılabilir.

Radyasyon şeklinde enerji soğuran bir maddenin lüminesans ışaması gösterip göstermeyeceği, P_r ışimalı veya P_{nr} ışımasız geçiş olasılıklarının oranına bağlıdır. Lüminesans verimi;

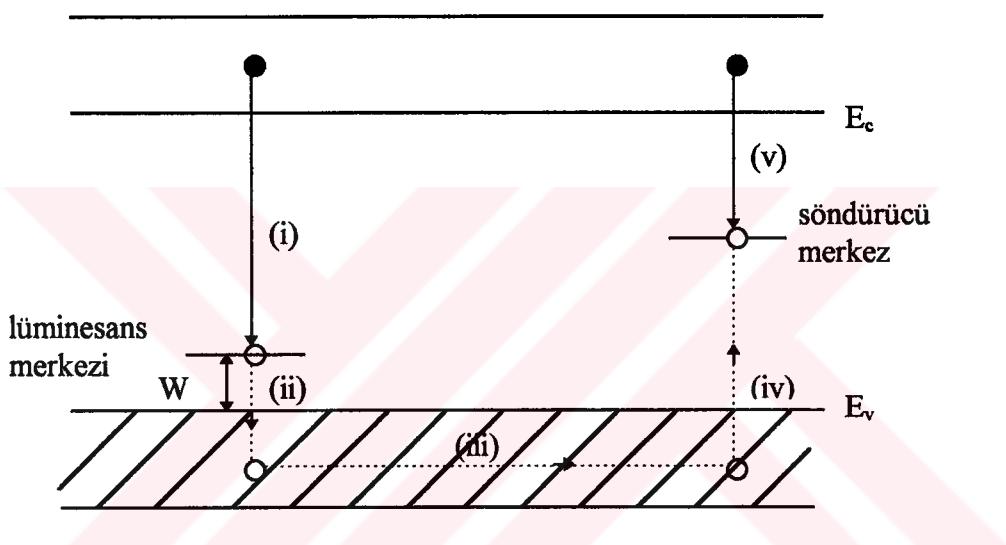
$$\eta = \frac{P_r}{P_r + P_{nr}} \quad (3.4)$$

ile tanımlanmaktadır. P_r sıcaklığından bağımsız, P_{nr} sıcaklığa $\exp(-\Delta E/kT)$ ile bağlı olduğundan,

$$\eta = [1 + c \exp(-\Delta E/kT)]^{-1} \quad (3.5)$$

eşitliği yazılabilir. Burada c bir sabittir.

Şekil 3.6'de görülen enerji band modeline söndürücü merkezlerin eklendiği bir geçiş modeli, Schön ve Klasens tarafından önerilmiştir (Mc Keever 1985). Bu model şekil 3.7'de gösterilmektedir.



Şekil 3.7. Lüminesans ışımının termik olarak bastırılmasını açıklayan Schön ve Klasens modeli;

- (i) İşımalı yeniden birleşme,
- (ii) Boşluğun ısı ile tuzaktan kurtulması,
- (iii) Boşluğun değerlik bandında ilerlemesi,
- (iv) Boşluğun bir söndürücü merkezde tuzaklanması,
- (v) İşımasız yeniden birleşme.

Buna göre kristal örgüde yük taşıyıcılarının yerdeğiştirmesini gözönünde bulunduran bu yeniden birleşme olayında, değerlik bandında yüksek sıcaklıklarda ısıyla oluşan boşluklar, kristal örgüde hareket ederken, söndürücü merkezlere (quenching centers) yakalanabilir ve bu merkezlerde tuzaklanabilirler. İletkenlik bandındaki bir elektron, lüminesans merkezine dönerken, lüminesans merkezinden farklı olan

söndürücü merkezdeki boşluk ile yeniden birleşir. Bu yeniden birleşmede bir lüminesans ışımı gözlenmez.

Söndürücü merkezlerde serbest bir elektronun yeniden birleşme verimliliği,

$$\eta = [1 + c' \exp(-w / kT)]^{-1} \quad (3.6)$$

eşitliği ile verilir. Bu (3.5) denklemiyle aynı biçimdedir. Burada c' bir sabittir.

Lüminesans merkez, düşük sıcaklıklarda yeniden birleşme merkezi, yüksek sıcaklıklarda ise basit bir boşluk tuzağı gibi davranışır. Yüksek sıcaklıklarda söndürücü merkezin bir yeniden birleşme seviyesi gibi davranışabilmesi için enerji derinliği W 'den büyük olmalıdır.

Bir elektron ile bir boşluğun ışısız yeniden birleşmesinde elektron enerjisinin yok olmasını açıklamak için pekçok çalışma yapılmıştır. Harcanan enerjinin bitişik komşu elektronunu uyarmak için kullanıldığı "Auger" olayından başka, kristal örgü fononlarına elektronlardan enerji aktarılmasına dayalı iki ayrı açıklama önerilmiştir (Henry and Lang 1977, Pässler 1978).

3.4.Termolüminesans Modelleri

Termolüminesans teorisini açıklamak için birçok araştırmacı çalışmıştır. En önemli ilerleme ilk olarak Randall ve Wilkins daha sonra Garlick ve Gibson tarafından yapılan araştırmalar sonucunda olmuştur. Randall ve Wilkins tuzaklardan kurtulan elektronların tekrar tuzaklanmadığı birinci mertebe ışımı (tek moleküller model), Garlick ve Gibson ise yeniden tuzaklanma ve yeniden birleşme olasılıklarının yaklaşık eşit olduğu varsayılan ikinci mertebe ışımı (çift moleküller model) dikkate alan TL teorisini kurmuştur. Genel mertebe modeli adı verilen TL teorisinde ise bu teoriler ışığında birinci ve ikinci mertebe teorik çalışma eğrilerine deneysel ışma piklerinin uymadığı durumlarda kullanılmak üzere geliştirilmiştir. Bu bölümde bu modeller kısaca açıklanmıştır.

3.4.1. Randall- Wilkins modeli

Randall- Wilkins modeline göre bir kristalde elektronların tuzaklardan kaçma olasılığı matematiksel olasılık teorilerindeki bağıntılarla ifade edilebilmektedir (Randall and Winkins 1945). Elektronların tuzaklardan kaçma olasılığı, tuzak enerjisine ve kristalin sıcaklığına bağlı olarak

$$p = s \exp(-E / kT) \quad (3.7)$$

eşitliği ile verilir. Burada p , elektronların tuzaklardan kaçma olasılığı; s frekans faktörü ya da kaçma frekansı (s^{-1}); E tuzak derinliği (eV); k Boltzman sabiti (8.61×10^{-5} eV/ K); T mutlak sıcaklık (K) olarak tanımlanır.

Buna göre $t=0$ anında tuzaklanmış n_0 elektron varsa, $t=t$ anında geriye n elektron kalır ve

$$-\frac{dn}{dt} = n p \quad (3.8)$$

bağıntısı yazılabilir. Burada (-) işaret, elektron sayısında birim zamandaki azalmayı ifade eder. (3.7) ve (3.8) eşitlikleri yardımıyla

$$-\frac{dn}{dt} = n s \exp(-E / kT) \quad (3.9)$$

denklemi elde edilir. Kristal ısıtma hızı β ise

$$\beta = \frac{dT}{dt} \quad (3.10)$$

denklemiyle verilir ve bu denklem (3.9) eşitliğinde yerine konularak;

$$\beta \frac{dn}{dT} = -n s \exp(-E / kT) \quad (3.11)$$

elde edilir ve çözüm olarak

$$n(T) = n_0 \exp \left[-\int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} \exp(-E / kT') dT' \right], \quad (3.12)$$

bulunur. Burada n_0 , başlangınça tuzaklarda bulunan elektron sayısını gösterir. Lüminesans şiddeti ise, elektronların tuzaklardan kaçma hızıyla orantılı olarak

$$I = -C\beta \frac{dn}{dT} \quad (3.13)$$

şeklinde yazılabilir. Burada C orantılılık katsayısıdır. Denklem (3.12)'den hareketle lüminesans şiddeti

$$I(T) = C \cdot n_0 \cdot s \cdot \exp(-E / kT) \exp\left[-\int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} \exp(-E / kT') dT'\right] \quad (3.14)$$

olarak verilebilir. Bu bağıntı, termolüminesans ışınağının, biçim ve büyüklüğünü E ve s gibi tuzak parametrelerine, tuzaklanmış elektronların n_0 sayısına, T sıcaklığı ve β ısıtma hızı gibi deney parametrelerine bağlayan Randall ve Wilkins'in birinci mertebe TL ışınağının şiddeti bağıntısıdır. Bu eşitlige Randall ve Wilkins formülü de denir.

Ayrıca bu modelde bazı varsayımlar kabul edilmiştir. Bunlar, tuzaklardan kurtulan elektronların tekrar aynı tuzaklara yakalanmadan yeniden birleşme yaptığı; elektronların tek bir enerji seviyesindeki tuzaklarda bulunduğu ve termolüminesans ışınağında ısıtma hızının sabit olduğunu söylemektedir. Bu üç varsayımdan ilk ikisini deneysel olarak kontrol etmek mümkün değildir, fakat üçüncü varsayımdan deneysel olarak laboratuarda sağlanabilir.

I ışınağının T sıcaklığına göre türevi alınıp, sıfır eşitlenirse $\left[\frac{dI}{dT} = 0 \right]$, denklemin çözümü olarak

$$\frac{\beta E}{kT_m^2} = s \cdot \exp\left(-\frac{E}{kT_m}\right) \quad (3.15)$$

eşitliği bulunur. Burada T_m , ışınağının en büyük değerine karşılık gelen sıcaklığıdır. Kristalin ısıtma hızı artırıldığında, T_m 'nin yüksek sıcaklıklara kaydığı saptanmıştır. Bu denklemden tuzak enerji seviyesi E, sadece s frekans faktörü bilinirse bulunabilir.

İki farklı ısıtma hızında kristal ısıtıldığı zaman, elde edilen en büyük sıcaklıklar için (3.15) denkleminden enerji

$$E = \frac{T_{m1} T_{m2}}{T_{m1} - T_{m2}} \left[\ln \frac{\beta_1}{\beta_2} + 2 \ln \frac{T_{m2}}{T_{m1}} \right] \quad (3.16)$$

şeklinde bulunur (Booth 1954). Burada T_{m1} ve T_{m2} sırasıyla β_1 ve β_2 'deki eğrilerin en büyük sıcaklıklarıdır. Bu eşitliğin deneysel ısıtma eğrilerine uyarlanması ile E , sonrada (3.15) denklemiyle s tuzak parametreleri hesaplanabilir (Chen and Winer 1970).

3.3.2. Garlick-Gibson modeli

Tuzaklardan çıkan elektronların yeniden birleşme olasılığının, tekrar tuzaklanma olasılığına eşit olduğu varsayımdan yola çıkan Garlick ve Gibson (1948), Randall ve Wilkins modelinde belirlenen enerji ve frekans faktörü belirleme yönteminden farklı yöntemler izleyerek hesaplamalar yapmışlardır.

Bu modelde toplam tuzak sayısı N , elektronlar tarafından doldurulmuş olan tuzak sayısı n , boş tuzak sayısı (boş lüminesans merkezi sayısı) ise $(N-n)$ ile gösterilir. Burada termolüminesans sırasında iletkenlik bandındaki elektron sayısının, tuzaklara yakalanmış elektron sayısından çok küçük olduğu kabul edilmiştir. Burada yeniden birleşme olasılığı;

$$p' = \frac{n}{(N-n)+n} = \frac{n}{N} \quad (3.17)$$

ile elde edilir. Tuzaklardan kaçan elektronun lüminesans merkezde bir boşluk ile yakalanma olasılığı ise

$$P = p \cdot p' = s \cdot [\exp(-E / kT)] \frac{n}{N} \quad (3.18)$$

olarak verilmektedir. Burada p , elektronun tuzaktan kaçma olasılığıdır. Burada termolüminesans ışık şiddeti,

$$I = \frac{n^2}{N} s [\exp(-E/kT)] \quad (3.19)$$

şeklindedir. Elektronlar tarafından doldurulmuş olan tuzak sayısı n ise

$$n(T) = \frac{n_0 \cdot N}{\left[N + n_0 \int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} \cdot \exp(-E/kT') dT' \right]} \quad (3.20)$$

olarak verilir. Buradan, ışıma şiddeti denklem (3.15)'e ,denklem (3.16)'da bulunan bağıntı uygulanmasıyla

$$I(T) = -\frac{dn}{dt} = \frac{n_0^2 \cdot s \cdot \exp(-E/kT)}{\left[1 + \frac{n_0}{N} \int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} \cdot \exp(-E/kT') dT' \right]^2} \quad (3.21)$$

Garlick ve Gibson'un ikinci mertebe kinetik denklemi elde edilir. Burada n_0 , başlangıçta tuzaklanmış olan toplam elektron sayısıdır. Bu eşitlik, (3.14) eşitliği ile verilen Randall ve Wilkins'in birinci mertebe denklemine karşılık gelir. Bu eşitlik

$$I(T) = n_0^2 \cdot s' \cdot \exp(-E/kT) \left[1 + \frac{n_0}{N} \cdot \int_{T_0}^T \frac{s}{\beta} \cdot \exp(-E/kT') dT' \right]^{-2} \quad (3.22)$$

olarak da gösterilebilinir. Burada N elektron tuzak sayısı, s kaçma frekansı (s^{-1}), $s' = s/N$ (cm^3/s^{-1}) olup ön exponansiyel faktördür.

3.3.3. Genel mertebe modeli

(3.14) ve (3.22) denklemleri ile verilen birinci ve ikinci mertebe teorik çalışma eğrilerine deneysel ışıma pikinin uymadığı durumlarda kullanılmak üzere

$$I = -\frac{dn}{dt} = s' \cdot n^b \cdot \exp(-E/kT) \quad (3.23)$$

bağıntısı verilmiştir. Burada b , kinetik mertebedir ve deneysel olarak belirlenir. Birinci ve ikinci mertebe kinetikler için b değeri sırasıyla 1 ve 2 değerlerini almaktadır. Genel mertebe kinetik durumunda ise b , 1 ile 2 arasında herhangi bir değer alabilir (Fleming 1968, Keating 1961).

Denklem (3.23)'de verilen bağıntı ile s' 'nın ısı bağımlılığı aşağıda verilen şekilde (Razdan et al., 1973)

$$I = s'' \cdot T^a n^b \exp(-E / kT) \quad (3.24)$$

birimde olup burada $s' = s'' T^a$ dır. Genel mertebe kinetik için ($b \neq 1$) termolüminesans, ışma sıcaklığının fonksiyonu olarak hesaplanacak olursa, (3.24) eşitliğinden

$$\frac{dn}{dt} = -n^b \cdot s' [\exp(-E / kT)] \quad (3.25)$$

olup $dt = dT/\beta$ dönüşümü yapılrsa

$$\frac{dn}{n^b} = -\frac{s'}{\beta} \exp(-E / kT) dT \quad (3.26)$$

bulunur ve (n_0, T_0) ve (n, T_1) sınırları arasında integral alınırsa

$$n^b(T) = \left[(b-1) \left(\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp(-E / kT') dT' + n_0^{1-b} \right) \right]^{\frac{b}{1-b}} \quad (3.27)$$

elde edilir. Burada $s = s' n_0^{b-1}$ veya $s' = s n_0^{1-b}$ olduğundan, (3.22) eşitliği kullanarak termolüminesans ışma şiddeti,

$$I(T) = n_0 s \exp(-E / kT) \left[(b-1) \left(\frac{s'}{\beta} \int_{T_0}^T \exp(-E / kT') dT' + 1 \right) \right]^{\frac{b}{1-b}} \quad (3.28)$$

olarak elde edilir. Burada T_0 başlangıç sıcaklığı ve n_0 'da bu sıcaklıkta tuzaklanmış elektron sayısı olup $b=2$ için (3.26) eşitliği; ikinci mertebe kinetik eşitliğine ve b değeri 1'e yaklaşırken de birinci kinetik eşitliğine dönüşmektedir.

3.4. Tuzak Enerji ve Parametrelerinin Belirleme Yöntemi

Bir termolüminesans çalışmasının en önemli amaçlarından biri, deneysel ışma eğrisinden elde edilen bilgilerin, incelenmekte olan madde içindeki yük geçişleri ile ilgili parametrelerin değerlerini hesaplamada kullanılmasıdır. Bu parametreler tuzak

derinliği (E), frekans faktörü (s), yakalanma tesir kesitleri ve termoluminesans ışımada rol alan çeşitli tuzak ve yeniden birleşme merkezlerinin yoğunluklarıdır. Burada bu parametrelerin belirlenmesinde kullanılan yöntemlerden biri olan farklı ısıtma hızları yöntemi kullanılmıştır.

3.4.1. Farklı ısıtma hızları yöntemi

Randall ve Wilkins, bir numunenin farklı iki lineer ısıtma hızıyla (β_1 ve β_2) ısıtıldığı zaman, farklı en yüksek sıcaklıklara karşılık gelen pik sıcaklıklarının (T_{m1} ve T_{m2}) yardımıyla tuzak derinliğinin hesaplanabileceğini göstermişlerdir (Denk 3.20). Hoogenstraaten (1958) ise birkaç lineer ısıtma hızı önererek ve (3.15) denklemi yeniden düzenleyerek

$$\ln\left(\frac{T_m^2}{\beta}\right) = \left(\frac{E}{kT_m}\right) - \ln\left(\frac{E}{ks}\right) \quad (3.29)$$

şeklinde yazmıştır. Farklı ısıtma hızlarına göre çizilen doğrunun ($\ln T_m^2/\beta$ 'nın $1/T_m$ 'ye göre) eğimi E/k 'yı verir. Bu doğrunun düşey ekseni kestiği noktadan da s değeri bulunabilir.

Chen ve Winer (1970), (3.29) bağıntısının her ısıtma hızı β için doğru olduğunu doğrudan genel metebe kinetik eşitliğine uygulayarak göstermişlerdir. Buradan gerekli yaklaşımlar sonucunda

$$\int_{T_0}^T \exp(-E/kT)dT = \frac{kT^2}{E} \exp(-E/kT)(1 - \Delta) \quad (3.30)$$

eşitliğine ulaşılır. Burada $\Delta=2kT/E$ olup (3.29) eşitliğinin sıcaklığa göre türevi alınıp sıfır eşitlenirse, $\left(\frac{dI(t)}{dT}\right)|_{T=T_m} = 0$,

$$\frac{(b-1)s}{\beta} \int_{T_0}^T \exp(-E/kT)dT + 1 = \left(\frac{s.b.k.T_m^2}{\beta E}\right) \exp(-E/kT_m) \quad (3.31)$$

eşitliği elde edilir. (3.30) ifadesi (3.31)'da yerine yazılıp gerekli düzenlemelerden sonra,

$$\left(\frac{\beta}{T_m^2} \right) = \left(\frac{sk}{E} \right) [1 + (b - 1)\Delta_m] \exp(-E / kT_m) \quad (3.32)$$

eşitliği bulunur. Burada $\Delta_m = 2kT_m/E$ olarak verilmektedir. β 'nın en büyük değerine karşılık T_m değeri ancak yüzde birkaç mertebede değişmektedir. Bunun sonucunda Δ_m çok az değişeceğinden $[1 + (b - 1)\Delta_m]$ teriminin sabit olduğu varsayılabılır. Bu durumda (3.32) eşitliği aşağıdaki biçimini alır:

$$\ln \frac{T_m^2}{\beta} = \text{sabit} + \frac{E}{k} \frac{1}{T_m} \quad (3.33)$$

Bu denklemde $\ln \left(\frac{T_m^2}{\beta} \right)$ değerlerine karşılık $1/T_m$ grafiği çizildiğinde elde edilecek olan doğrunun eğimi E/k 'yı verecektir. Buradan E değeri bulunabilir. (3.32) eşitliğini kullanarak frekans faktörü

$$s = \left(\frac{\beta}{T_m^2} \right) \left(\frac{E}{k} \right) \exp \left(\frac{E}{kT_m} \right) [1 + (b - 1)\Delta_m]^{-1} \quad (3.34)$$

şeklinde hesaplanabilir.

BÖLÜM 4. RADYASYON FİZİĞİ VE RADYOAKTİVİTE

Bu bölümde çalıştığımız ana konusu olan termoluminesans olayında kullandığımız nükleer tekninin anlaşılmasıında yararlı olacak bilgiler yer almaktadır. İlk olarak radyoaktivite ve radyoaktif ışınlar, daha sonra radyasyonların maddeyle etkileşmeleri, en son olarak radyasyon doz birimleri ile ilgili açıklamalar yapılmaktadır.

4.1. Radyasyon ve Enerji

Radyasyon boşlukta yayılabilen bir enerji şekli olup elektromanyetik (dalga) ve parçacık yapılı radyasyon olmak üzere ikiye ayrılır. Kuantum teorisine göre bir dalga hareketi yapan bu enerji şekli, kuantum veya foton adı verilen çok küçük enerji paketleri halinde yayılır ve yutulur. Elektromanyetik radyasyon

$$E=h\nu \quad (4.1)$$

bağıntısı ile hesaplanır. Burada, $h=6,62 \cdot 10^{-34}$ J.s olup Planck sabitini, ν radyasyon frekansıdır (Göksel 1973). Parçacık yapılı radyasyonlar ise, hareket halindeki atomaltı parçacıklardan meydana gelir. Bu parçacıkların hızı ışık hızına göre çok küçük olduğunda kinetik enerjisi klasik mekanik yasalarına göre,

$$E_k = \frac{1}{2} m v^2 \quad (4.2)$$

ile hesaplanır. Parçacığın hızı ışık hızına yaklaştığında ise enerjisi, relative teorisine göre

$$E_k = m_0 c^2 \left(\frac{1}{\sqrt{1 - (v^2 / c^2)}} - 1 \right) \quad (4.3)$$

formülünden yararlanılarak bulunur. Burada m_0 , parçacığın durgun kütlesini, c , ışığın ve v ise parçacığın hızını göstermektedir. Atomaltı parçacıklar için enerji

birim olarak elektronvolt (eV) kullanılır ve 1 eV, bir elektron yükü taşıyan herhangi parçacığın bir voltlu potansiyel farkı altında hızlandırılması ile kazandığı enerji olarak bilinir.

4.2. Radyoaktivite ve Radyoaktif Işınlar

Atom, bir elementin herhangi bir reaksiyona girebilen en küçük parçasıdır. Maddenin bir atom-gram ağırlığındaki bir parçasında (örneğin 1g hidrojende yada 12g karbonda), o elementin 6.02×10^{23} atomu bulunur. Atomun merkezinde kütlesinin en büyük kısmının toplandığı pozitif yüklü (yaricapı yaklaşık 10^{-12} cm civarında) bir çekirdek vardır. Çekirdek, proton adı verilen pozitif yüklü parçacıklarla nötron adı verilen yüksüz parçacıklardan oluşur. Protonların varlığı nedeniyle çekirdek, pozitif yüklidür. Elektron ise negatif yüklidür ve çekirdek etrafında farklı yarıçaplardaki yörüngelerde bulunur. Protonların sayısı ile elektronların sayısı birbirine eşittir ve bu nedenle atom elektrisel olarak yüksüzdür. Proton veya elektronların toplam sayısı bir elementi karakterize eden atom numarasını (Z) verir. Proton ve nötron sayılarının toplamında kütle numarasına (A) eşittir. Çekirdekteki nötron sayısı ise $A-Z$ ile verilir.

Çekirdeğinde nötronu bulunmayan, bir protonu ve yörunge üzerinde bir elektronu bulunan hidrojen, en basit atomdur. Diğer tüm atomların çekirdeğinde (örneğin helyum, iki proton ve iki nötron, yörunge üzerinde iki elektrona sahip olarak) nötron bulunur. Hafif çekirdeklerde proton ve nötronların oranı bir iken, periyodik tablonun sonundaki ağır elementlere doğru bu oran artmaktadır. Bunun sonucunda da çekirdeğin artık kararlı olmadığı görülür. Bu özelliğe sahip çekirdeklere radyoaktif çekirdek adı verilir. En ağır kararlı çekirdek Bizmut'dan ($^{207}_{83}\text{Bi}$) sonra çekirdeklere kararlı olmak için dışarıya ya parçacık (alfa veya beta parçacıkları) ya da elektromanyetik (gama ışınları) dalga şeklinde enerji verirler. Bu olaya radyoaktivite (radyoaktif parçalanma) denir.

Radyoaktivite iki şekilde oluşabilir. Bunlar, doğada varolan 50'den fazla izotopta (örneğin ^{238}U , ^{226}Ra , ^{40}K vb.) görülen doğal radyoaktivite ile bazı elementleri nötronlar, yüklü parçacıklar veya fotonlarla bombardıman ederek oluşturulan yapay

radyoaktivitedir. Bu bombardıman sonucunda oluşan çekirdek (örneğin ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{32}P , vb.) radyasyon türlerinden birine uyarak parçalanma yapabilir. Bugün kullanılan radyoaktif çekirdeklerin çoğu yapay olarak üretilmiştir.

4.3. Parçacık Karakterli Radyasyonlar

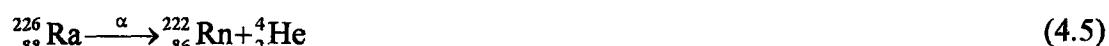
Bu ışınlar, parçacık enerjisi, kütlesi ve yükü ile içinden geçikleri ortamın özelliklerine bağlı olarak yutulurlar.

4.3.1. Alfa (α) parçacıkları

Alfa parçacıkları pozitif yüklü helyum (${}_2^4\text{He}$) çekirdeklidir. Alfa salan bir ${}_Z^A\text{X}$ çekirdeği,



bağıntısı uyarınca ${}_{Z-2}^{A-4}\text{Y}$ ürün çekirdeğine dönüşür. Polonyum, radyum, toryum, vb. gibi ağır çekirdekler alfa parçacığı yayınlanırlar. Bu ağır çekirdeklerden biri olan radonun (${}_{88}^{226}\text{Ra}$) alfa bozunumu



ile gösterilir.

Elektron kütlesinden yaklaşık 7000 kat fazla oluşları ve 10 MeV dolayındaki yüksek enerjileri nedeniyle alfa parçacıklarının, atomların yörüngé elektronları ile etkileşme olasılığı çok yüksektir. Bu sırada iyonizasyon ve uyarılma olaylarından biri veya her ikiside meydana gelebilir ve alfa parçacıkları çok kısa bir mesafede enerjilerini, yolları üzerinde cm başına 50000 ile 80000 iyon çifti meydana getirerek kaybederler. Yüksek enerjilerine karşı girici güçleri ya da alabildikleri yol son derece sınırlı olduğundan derinin koruyucu tabakasından içeri giremezler. Ancak, herhangi bir yolla vücut içine alındıklarında son derece tehlikeli olabilirler.

4.3.2. Beta (β) parçacıkları

Bu parçacıklar çekirdeklerden hızla fırlatılan elektronlardır. Negatif yüklü elektron veya pozitif yüklü pozitron olabilirler. Beta salan bir ${}^A_Z X$ çekirdeği,



veya



bağıntısına göre ürün çekirdeğine dönüşür. Nötrino (ν), antinötrino ($\bar{\nu}$) ve gama ışınımda (γ) ürünler arasındadır. Beta ışimasına örnek olarak karbon (${}^{14}_6 C$) ve azot (${}^{12}_7 N$) bozunumları



veya



şeklinde verilebilir. Bir elektronun kütlesi ve yüküne eşit kütle ve yüke sahip olan beta parçacıkları, alfa parçacıklarına oranla madde içinde daha fazla yol alırlar. Bunun nedeni kütlelerinin alfa parçacıklarından 7000 kez daha hafif olmasıdır. Etkileşmelerinde küçük enerji kayıplarıyla saçılmasına uğrarlar. Beta parçacıklarının enerjisi 0 ile 5eV arasında değişmekte olup iç ve dış radyasyon tehlikesi oluştururlar.

4.4. Elektromanyetik Karakterli Radyasyonlar

Madde içindeki artı ve eksi yüklü iyonlar yükleri olmayan elektromanyetik radyasyonlarla etkileşerek uyarılırlar ve komşu atomların iyonize olmalarına ya da hareket etmelerine neden olurlar.

4.4.1. Gama (γ) ışınları

Gama ışınları çok kısa dalga boylu elektromanyetik radyasyonlardır. Gama ışını yayılanması ile çekirdek hiçbir değişimde uğramaz. Bir gama ışınması süreci



ile verilirse ${}_{Z}^{A}X^*$ burada uyarılmış bir seviyedeki çekirdeği gösterir. Doğal radyoaktivitede tek başına gama ışınması oluşmaz, genellikle, alfa ve beta bozunmalarından sonra oluşur. Bunu nedeni ise bu bozunmalardan sonra oluşmuş çekirdek çoğunlukla uyarılmış durumda bulunmasıdır. Gama ışınması oluşumuna örnek olarak beta ışınması yapan bir bor (${}_{5}^{12}B$) atomu



şeklinde verilebilir. Gama ışını yüksek enerjili ve maddeye o oranda giricidir. Gama enerjileri 0.1 MeV ile 3 MeV arasında değişir. Yüksek girici özelliklerinden ötürü dış radyasyon tehlikesi oluştururlar.

4.5. Radyasyonun Madde ile Etkileşmesi

Maddeler, girici özellikleri yüksek olan, ya elektromanyetik band içindeki x veya γ ışınlarından ya da parçacık karakterli ışınlar olan α veya β ışınlarından etkilenirler. α veya β ışınlarından etkilenme süreçleri yukarıda açıklanmıştır. Gama ışınlarının madde ile etkileşmesi ise rezonans olayı dışında üç olasılıkta meydana gelir.

4.5.1. Fotoelektrik olay

Bu olayda ışınının bütün hv enerjisi, atomun kuantumlanmış enerji seviyesinde bulunan elektrona aktarılır. Dolayısıyla bu elektron $\Delta E = hv - hv_0$ kinetik enerjisi ile bulunduğu yörüngeye çıkar. Burada hv_0 , elektronun o yörüngegedeki iyonlaşma

enerjisidir. Çünkü bu olayda yörüngedeki elektronun, gelen enerjinin hepsini yuttuğu görülür ve bu elektrona fotoelektron denir (Şekil 4.2).

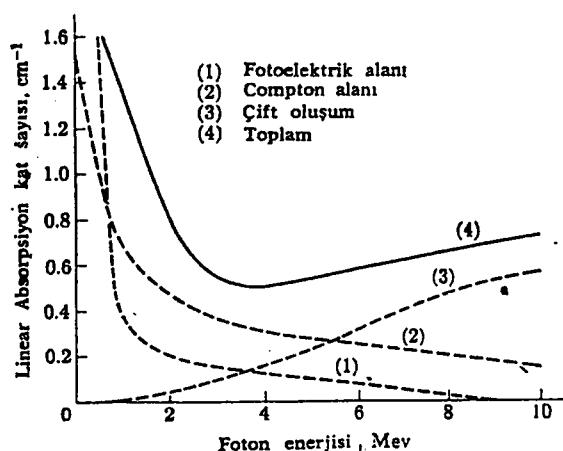
4.5.2. Compton olayı

Gama ışınları atomun serbest elektronu ile esnek çarpışınca enerjisinin bir kısmını bu elektrona vererek onun hız kazanmasına neden olur. Bundan dolayı enerjisi azalan gama ışınları ve elektron farklı yönlere saçılırlar (Şekil 4.2).

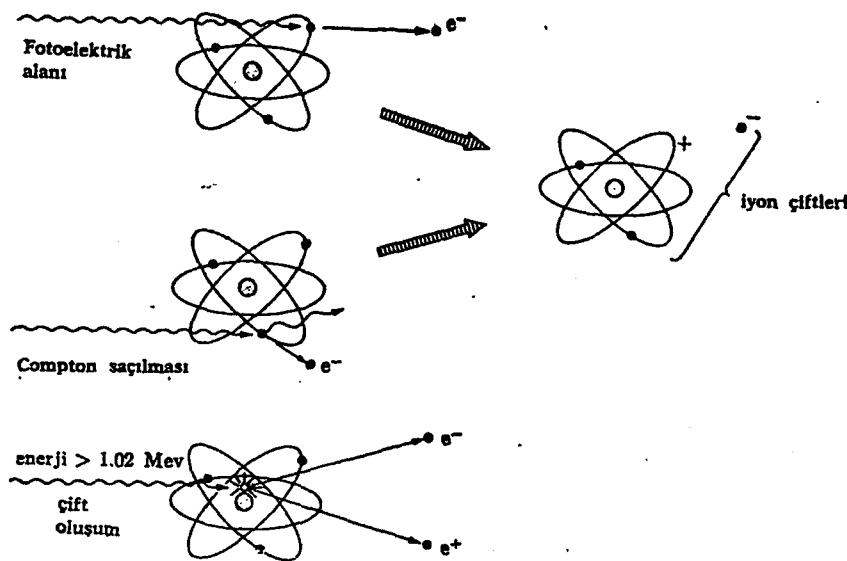
4.5.3. Çift oluşumu

Bir gama ışını, bir atom çekirdeği yakınında bu çekirdeğin kuvvetli manyetik alanından dolayı kaybolur. Bunun sonucunda biri negatif biri de pozitif yüklü iki elektron ortaya çıkar. Gama ışınının enerjisi en az duran iki elektronun enerjisine ($2mc^2$ 'ye) eşit olmalıdır. Daha büyük foton enerjisi, elektron ve pozitronun kinetik enerjisi olarak ortaya çıkar ve bu parçacıkların atomdan büyük hızla ayrılmasına neden olur (Şekil 4.2).

Bir soğurucu için, enerji arttıkça Compton saçılması ve fotoelektrik etki azalırken, çift oluşumu olasılığı artar (Şekil 4.1).



Şekil 4.1. Kurşunun teorik lineer soğurma katsayılarının foton enerjisine göre değişimi (Richards et al. 1982)



Şekil 4.2. Gama ışınının madde ile etkileşmesinin şematik gösterimi (Richards et al. 1982)

4.6. Radyoaktif Bozunum Yasası ve Bozunum Yarıömrü

Doğal yada yapay her radyoaktif çekirdeğin kendine özgü bir bozunma karakteristiği vardır. Bunlar, çekirdeğin yayıldığı radyasyonun cinsi, enerjisi ve bozunma hızı olarak özetlenebilir. Bozunan radyoaktif maddenin tüm atomları aynı anda bozunmaz. Birim zamanda bozunan çekirdeklerin sayısı, kalan ve bozunmaya hazır çekirdeklerin sayısıyla orantılıdır. Oranı katsayı ise "bozunma sabiti" olarak adlandırılır.

$N(t)$, t anında bozunmamış olarak kalan çekirdeklerin sayısı ise birim zamanda bozunan çekirdek sayısı, radyoaktif bozunum yasası uyarınca,

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t) \quad (4.13)$$

şeklinde yazılmalıdır. λ , bozunma sabiti olup, denklemdeki (-) işaret, mevcut radyoaktif çekirdek sayıındaki azalmayı göstermektedir. $t=0$ anında, yani başlangıçtaki radyoaktif çekirdek sayısı $N(0)$ ise, Denklem (4.13)'ün çözümü, t anında hala bozunmamış olarak varolan çekirdek sayısı,

$$N(t) = N(0) e^{-\lambda t} \quad (4.14)$$

olarak bulunacaktır. "Bozunma yarıömrü", mevcut radyoaktif çekirdek sayısının radyoaktif bozunum ile yarıya inmesi için geçen zaman süresi olarak tanımlanmaktadır. Yani $N(t) = N(0)/2$ olması için geçecek olan $t=T_{1/2}$ süresi, yarıömür, Denk.(4.14)'den

$$T_{1/2} = \frac{0,693}{\lambda} \quad (4.15)$$

olarak bulunur.

4.7. Radyasyonun Deteksiyonu ve Ölçülmesi

Bütün radyasyon deteksiyon metodları, bunların geçikleri ortamlarda iyonizasyon meydana getirme özelliklerine dayanır (Göksel 1973). Genellikle kullanılan radyasyon deteksiyon ortamları şunlardır:

4.7.1. Fotografik emilsiyonlar

Radyoaktif maddelerin yayınladıkları radyasyonlarla fotoğraf plakalarının karartma özelliği göstermesi ve bunun radyasyon miktarı ile artması gibi nedenlerle bu teknik, nükleer radyasyonların deteksiyonunda kullanılan ilk yöntemdir.

4.7.2. Gaz iyonizasyon cihazları

İyonlaştırıcı radyasyonların gaz içinde meydana getirdikleri iyonların toplanması ve sayılması esasına dayanır. İyon sayısı, radyasyon miktarı ile orantılı olup, iyon sayısından hareketle radyasyon miktarı belirlenir.

4.7.3. Sintilasyon detektörleri

Sintilasyon fosforu adı verilen maddeye radyasyon enerjisinin transferi ile bu maddenin görülen ışık şiddetinde veya görünen ışığa yakın dalga boylarında enerjinin yeniden yayınlanması olayıdır.

4.7.4. Kimyasal bozunma detektörleri

Bu detektörlerde radyasyon etkisi ile meydana gelen iyonların ya yeni kimyasal bileşikler oluşturmalarından yada ışınlama öncesi varolan kimyasal özelliklerini değiştirmelerinden faydalananır (Kımyasal bozunma sistemlerinin en önemli sakıncası radyasyon duyarlılıklarının az oluşudur).

4.7.5. Lüminesans ortamlar (Termolüminesans dozimetreleri)

Nükleer radyasyonlara maruz bırakılmak sureti ile uyarılmış bazı katı maddelerin ısıtılması ile bu maddelerin ışık yayılaması olayına termolüminesans adı verilir. Radyasyon etkisiyle uyarılarak normal seviyelerinden iletkenlik bandına çıkarılan ve aradaki tuzaklarda tutulan elektronlar, ısıtma yolu ile enerji alarak bu tuzaklardan kurtulup tekrar normal seviyelerine dönüşleri sırasında, iki enerji seviyesi arasındaki enerji farkına eşit enerjide görünen bir ışık yayınları. Yayınlanan ışığın şiddeti, tuzaklarda yakalanmış elektronların sayısı ve dolayısıyla elektron tarafından absorplanmış radyasyon dozu ile orantılıdır. Bu lüminesans ışık şiddetinin ölçülmESİyle yutulan radyasyon dozu saptanabilir (TL olayı).

4.8. Radyasyon Dozimetrisi ve Doz Birimleri

Radyasyon dozimetrisi, iyonlaştırıcı radyasyon miktarının ölçülmesi anlamına gelir. Bir radyasyon demetinin şiddetini ölçenin yolu, belirli bir yerdeki birim yüzeyden geçen parçacıkların veya elektromanyetik radyasyonların sayısının belirlenmesine dayanır. Açı olarak adlandırılan bu sayı ϕ

$$\phi = \frac{n}{S} \text{ foton/ s. cm}^2 \quad (4.16)$$

ile gösterilir. Burada, n foton yada parçacık sayısını, S radyasyon geçtiği yüzey alanını ifade eder. Bir alan içinde belirli bir anda geçen toplam radyasyon miktarı ise,

$$Q = \phi \cdot t \quad (4.17)$$

denkleminden hareketle bulunur. Burada t zamanı göstermektedir. (4.16) denklemi (4.17) denklemine uygulanırsa,

$$Q = \frac{n}{A} t \quad (4.18)$$

elde edilir. Bu radyasyon miktarını bir kısmı malzemenin cinsine bağlı olarak yutulacaktır. Dış ortamdan enerjinin geçiş hızına “ışınlama dozu” ve malzemedeki enerji yutulma hızına da “absorblama dozu” adı verilir.

İşınlama doz birimi olarak Röntgen, absorblama doz birimi olarak da rad kullanılmaktaydı. Ancak “Uluslararası Radyasyon Birimleri Komisyonu”nun (ICRU) önerileri doğrultusunda, işınlama doz birimi olarak Röntgen yerine Coulomb/kg (C/kg), absorblama birimi rad yerine de Gray (Gy) kullanılmaya başlanmıştır.

4.8.1. İşınlama doz birimleri :

Coulomb/kilogram (C/kg): Normal şartlar altındaki (0°C ve 760 mm Hg basıncında) havanın bir kilogramında bir Coulomb'luk pozitif veya negatif yüklü iyonlar meydana getiren radyasyon miktarıdır.

Röntgen (R) : 0.001293g hava içinde bir elektrostatik yük birimlik (1esb) pozitif veya negatif yüklü iyonlar oluşturan X veya gama ışınları miktarıdır. 0.001293g miktarı normal şartlarda 1cm^3 havaya eşittir. Birim dönüşümleri:

$$1\text{C/kg} = 3876 \text{ R} \quad (4.19)$$

veya

$$1\text{R} = 2.5 \times 10^{-4} \text{ C/kg} \quad (4.20)$$

olmaktadır. C/kg ve Röntgen şiddet birimi olmayıp, miktar birimleridir. Günümüzde kullanılan şiddet birimi Röntgen/saat'dır.

4.8.2. Absorblama doz birimleri:

Gray (Gy) : Bir maddenin bir kilogramında bir joule'lük enerji soğrulması meydana getiren radyasyon miktarıdır.

Rad (rad) : Bir maddenin bir gramında 100 erg'lik enerji absorbsiyonu meydana getiren radyasyon miktarıdır. Birim dönüşümleri

$$1 \text{ Gray (Gy)} = 100 \text{ rad} = 1 \text{ J/kg} \quad (4.21)$$

veya

$$1 \text{ rad} = 0.01 \text{ Gy} = 0.01 \text{ J/kg} \quad (4.22)$$

Gray ve rad, şiddet veya hız birimi olmayıp, miktar birimidir. Bu birimlerden türetilen Gy/s, rad/s şiddet birimi olarak kullanılması gerekmekte ise de, bunun yerine bugün Gy/saat (daha çok $\mu\text{Gy/saat}$) ve rad/saat gibi şiddet birimleri kullanılmaktadır.

BÖLÜM 5. DENEYSEL ÇALIŞMA

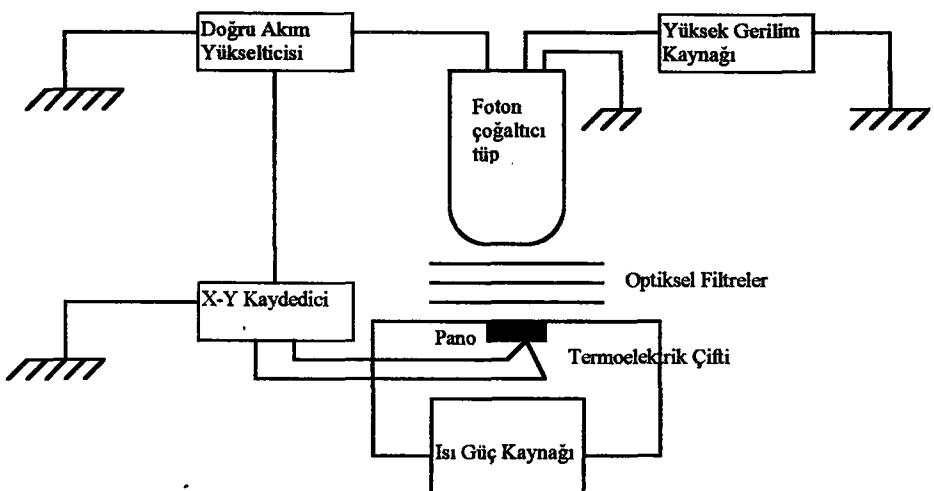
Bu bölümde kuvars kristalinin termolüminesans özelliklerini incelemek ve tuzak parametrelerini belirlemek amacıyla kullanılan termolüminesans ölçüm sistemi tanıtılacak daha sonra da örneklerin hazırlanması, anilasyon işlemi, örnek kuvars kristallerin ıshınlanması ve ölçüm işlemleri anlatılacaktır.

5.1. Termolüminesans Okuyucu

Termolüminesans dozimetre (TLD) okuyucuları, araştırma amaçlı, ticari veya amaca göre tasarımlı sistemler olmak üzere üç grupta toplanabilir. Bütün TLD okuyucularına aynı tasarım ilkeleri uygulanmasına karşın belli bir uygulama alanına göre bazı özelliklere sahip olurlar. Araştırma amaçlı olarak tasarlanmış okuyucuların sayıları ve çeşitleri çoktur. Ticari TLD okuyucuları ise ikiye ayrılır. Bunlar belli bir dozimetre yapısına göre ve çeşitli dozimetre biçimleriyle ıshınlayıcı (fosfor) tipine göre tasarlanılmış sistemlerdir. Aynı zamanda birçok ticari okuyucu, araştırma amaçlı olup bazıları değişken ısıtma programlıdır. Amaca göre tasarımlı otomatik sistemler, sayıca az ve uygulama alanları çok özeldir. Bunlar büyük işletmelerde personel dozimetresi için, belirli bir tip dozimetreye göre tasarlanmıştır. Bütün TLD okuyucuları için ortak olan özellikler şu şekilde sıralanabilir:

- (1) Fosfor ıshıtma sistemi
- (2) Işığın toplama ve deteksiyon sistemi,
- (3) Elektronik ölçme sistemi,
- (4) Görüntüleme ve kayıt sistemi.

Termolüminesans okuyucu aşağıda sıralanmış birkaç temel düzenekten meydana gelmiştir (Şekil 5.1)



Şekil 5.1.Termolüminesans dozimetre okuyucusunun blok şeması

5.2. Termolüminesans Ölçme ve Okuma Sistemi

Ölçme sistemi; foton çoğaltıcı tüp ile sayıcı ve X-Y kaydediciden oluşur. Foton çoğaltıcı tüp termolüminesans okuyucusunun en önemli bölümü olup ışınanın termolüminesans akıma dönüşmesini sağlar. Deneylerde kullanılan foton çoğaltıcı tüp P4232BA tipindedir.

Foton çoğaltıcı tüpün önemli üç tip elektron ışıması vardır. Bunlar fotoelektrik ışıma, ikincil ışıma ve termoiyonik ışımadır. Fotoelektrik ışıma, fotoelektrik olayı ile açıklanır. Bu ışınanın oluşması için fotokatod olarak sezyum antimon alaşımı madde kullanılmıştır. Bu maddenin spektrumlarının görünen ışık bölgesine isabet etmesi ve kırmızı ötesi ışılara hassas olması nedeniyle termolüminesans spektrumlarında kullanılırlar. 300 °C'den yukarı sıcaklıklarda kristallerin ısıtıldığı paletlerden çıkan kırmızı ötesi ışılara cevap veremezler. Kristalin çıkardığı ışınlar doğrudan doğruya elektrotlara gönderilir.

İkincil ışımda ise, eğer kademeli katı yüzeyler arasında 100V'luk potansiyel farkı varsa ve bunlar elektronlarla bombardıman edilirse yüzeylerden elektron sökülmesine neden olur. Yüzeyden çıkan bu ikincil elektronların sayıları yüzeyin cinsine, gelen elektronların enerjilerine ve geliş açılarına bağlıdır.

Termoionik ışıma, fotokatod maddelerinin düşük iş fonksiyon enerjilerine sahip olmasından kaynaklanır. Bunun nedeni ise, bu maddeler oda sıcaklığında bile emisyonu uğramaktadır. Düşük ışık seviyelerinde ihmal edilmesi imkansızdır. Foton çoğaltıcı tüpte az ve düşük seviyede görünen bu ışıma, yükselticide oldukça fazla yükseltilip yanlış okumalara sebep olmaktadır. Termoionik ışımının önüne geçmek için tüpler soğutulmaktadır.

Bu ışımalarla foton çoğaltıcıdan çıkan akım, uygun katod takip edicisi ile yükseltilir. Yükseltme faktörü genel olarak 30-50 arasındadır. Katod takip edicisinden sonra doğru akım yükselticisi (DA ratemeter) bağlanır.

DA yükselteci genel olarak (X-Y) kaydedici kullanıldığı zaman gerekir. Elektrometre veya elektronik sayıcılar kullanıldığı zaman DA yükselticiye gerek kalmamaktadır. Işıma eğrisini görmek için, istenirse osiloskoplar da kullanılabilir. Okuma sisteminde kristalle foton çoğaltıcı tüpün fotokatodu oldukça yakın alınmıştır. Aksi takdirde ışık şiddeti uzaklığın karesiyle ters orantılı olarak azaldığından ışık verimi azalır. Diğer taraftan ise boşluğun fazla olması, fotokatodun düzgün aydınlanması ve soğutma problemlerinin azalmasına yaramamaktadır. Gözönünde tutulması gereken diğer bir nokta ise optik filtre seçimidir. Kristal ısıtıldığı zaman ışıma spektrum bileşenlerinde değişiklikler olmakta ve her ışıma eğrisinde aynı olmayan dalga boyları yayılmamaktadır. Bu sebepten fotokatodun verimi de ona göre değişmektedir. Bir ışıma eğrisinde iki pik altındaki alanı meydana getiren merkezlerin sayıları ve yeniden birleşme oranları aynı olmadığından, farklı dalga boylarında ve farklı şiddetlerde ışımalar olmaktadır. Pratikte ışınların dalga boyları birbirinden bağımsız olarak ölçülmemekte ve bu sebepten belirli düzeltmeler yapılmamaktadır. En uygun pratik çözüm ise ticari foton çoğaltıcı tüpler ve bunlarla birlikte optik filtreler kullanmaktadır. Fakat bu durumda tüpün hassasiyeti üçte bire inmektedir (Engin 1996).

Kalibrasyon hatalarından kurtulmak için ışık kalibratörleri cihazın içerisine konmuştur. Işık kalibratörleri radyoaktif kaynak (C-14), plastik sintilatör veya inorganik fosforlar içerir. Sistemin kalibrasyonu günde bir kez bu kalibratörlerle kontrol edilir.

Isıtma eğrisinin maksimumuna kadar kırmızı ötesi (Infrared) ışınları yaymayacak şekilde ışıma sisteminin yapılmış olması gerekmektedir. Bizim kullandığımız sistemde kırmızı ötesi ışınları tutan filtre olarak Corning Glass No: 4305 kullanılmıştır.

5.3. Isıtma Sistemi

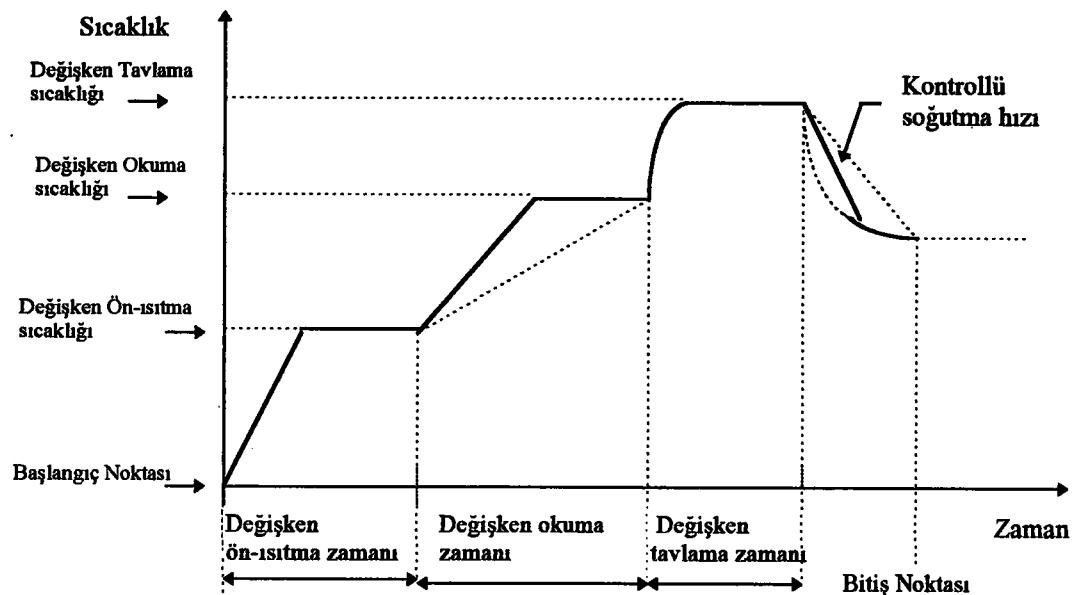
Her metodun kendine göre bir ısıtma sistemi bulunmaktadır. Numunenin toz, disk veya küçük çubuklar şeklinde (rod) olması nedeniyle ısıtma planşetleri çeşitli şekillerde yapılmıştır. Isıtma şekilleri ise, ya doğrudan doğruya ya da kristalin tutturulduğu desteğin ısıtılmaması şeklinde olmaktadır.

Isıtma kapları genel olarak nikel-krom alaşımından yapılmışlardır. Yüzey oksidasyonunu önlemek için üst yüzeyleri gümüşle kaplanmıştır.

Sıcaklıklar bir termoelektrik çifti ile kontrol edilmektedir. Termoelektrik çift, ısıtma kabının hemen altına monte edilmiştir. Program haricindeki ısı farklılıklarını geri beslemeli elektronik bir kumanda devresiyle kontrol edilmekte ve ısıtma hızları bir kontrol devresiyle programlanabilmektedir.

Isıtma sisteminin (heating cycles) temel amacı, tuzaklardaki elektronlar tuzaktan kurtuluncaya kadar kristali ısıtmaktır. Şekil 5.2'de çalışmalarımızda kullandığımız TL okuyucusunun araştırma amaçlı ısıtma çevrimi görülmektedir.

Araştırma amaçlı ısıtma çevriminde görülen ön ısıtma zamanı , düşük sıcaklık pikinin doz ölçümüne katkısını yok etmek için kullanılır. Okuma zamanı aralığı doz ölçümü için olup tavlama zamanı ise yüksek ışınlama düzeylerinde kristalin tuzaklarından tüm elektronları tamamen silecek şekilde kristalin yüksek sıcaklıkta belli bir süre tutulması için kullanılır. İyi bir ışıma eğrisi elde etmek için ısıtıcı, geniş bir sıcaklık aralığında doğrusal olarak kontrollü ısıtma ve soğutma, sıcaklık platosu seçimi ile ön ısıtma, tavlama ve soğutma sürelerinin seçiminde esneklik sağlayacak biçimde olmalıdır.



Şekil 5.2. Bir Termolüminesans okuyucu için araştırma amaçlı ısıtma çevrimleri

5.4. Anilasyon (Tavlama) İşlemi

Anilasyon (tavlama), kristallerin içinde bulunan tuzakların, elektronlardan tümüyle boşaltılması için yapılan bir işlemidir. Termolüminesans özelliklerini incelediğimiz kuvars örnekler, öncelikle anilasyon işlemine tabi tutulmuşlardır. Bu amaçla toz kuvars kristalleri farklı sıcaklıklarda ısıtılmış, stabil sıcaklıklara ayarlanmış etüvde 24 saat tutulmuştur. Farklı sıcaklıklarda ayrı ayrı anilasyon işlemine tutulmasının sebebi, daha önceden tuzaklarda yakanmış elektronların en uygun kurtulma sıcaklıklarının belirlenmesini amaçlamaktadır. Bu nedenle kuvars mineralleri önce 100°C 'de anilasyon işlemine tabi tutulmuş ve daha sonra aynı işlem 200°C ve 300°C için tekrarlanmıştır.

5.5. Örneklerin Işınlanması

Aniliye (tavlama) edilen örnekler, loş bir ortamda ışık almayacak şekilde siyah renkli polietilen kapsüllere doldurulmuştur. Bu iş için 3 mm çapında, 20 mm boyunda 22 adet kapsül kullanılmış olup bu kapsüller yaklaşık 60 mg toz kristal alabilecek

hacime sahiptirler. Hazırladığımız örneklerin tuzak derinliği ve frekans faktörünün bulunması için örneklerin yapay olarak ışınlanması gereklidir. Yapay ışınlama işlemleri, Ankara Nükleer Araştırma ve Eğitim Merkezinde (ANAEM) doz hızı 0.5 Mrad/saat olan Gamma Cell PX-γ-30 tipindeki γ Co-60 gama kaynağı ile gerçekleştirilmiştir.

100 $^{\circ}\text{C}$, 200 $^{\circ}\text{C}$ ve 300 $^{\circ}\text{C}$ 'de aniliye edilmiş kuvars tozları Tablo 1'de verilen zaman aralığı içinde gama radyasyon dozlarında ışınlanılmışlardır.

Tablo 5.1 . Kuvars örneklerin ışınlanma süreleri ve aldığı radyasyon dozlarının eski ve yeni birimlerle ifadesi

Tavlama sıcaklığı	Işınlama Süresi (dak)	Doz	
		kGy (yeni)	krad (eski)
100 $^{\circ}\text{C}$, 200 $^{\circ}\text{C}$, 300 $^{\circ}\text{C}$	2	0.16	16.6
100 $^{\circ}\text{C}$, 200 $^{\circ}\text{C}$, 300 $^{\circ}\text{C}$	4	0.33	33.2
100 $^{\circ}\text{C}$, 200 $^{\circ}\text{C}$, 300 $^{\circ}\text{C}$	8	0.66	66.4
100 $^{\circ}\text{C}$, 300 $^{\circ}\text{C}$	12	0.99	99.6

5.6. Termolüminesans Ölçümleri

Işınlanan örneklerin termolüminesans ölçümleri ve değerlendirilmeleri ANAEM laboratuuarlarında gerçekleştirılmıştır. Bu amaçla termolüminesans ölçümleri, 15 mg'lik toz kristaller halinde Pitman model Toledo 654TL okuyucusunda, 200 cm^3/dk 'lik azot gazı atmosferi ve oda sıcaklığı şartlarında 380 $^{\circ}\text{C}$ 'ye kadar ısıtularak elde edilmiştir. Işıma eğrisini çizdirmek için, Yokogawa Technicorder Type 3078 X-Y kaydedicisi kullanılmıştır. Aletin duyarlılığı ise background sayımları alınarak test edilmiştir.

Işınlanmış toz kristaller, termolüminesans okuyucusunun ısıtıcı tablasına (Pano) konularak, tabladan akım geçirilmesi yoluyla ısıtılır. Termolüminesans olayından dolayı oluşan elektromanyetik ışın, optik filtreden geçtikten sonra foton çoğaltıcı tüpe ulaşır ve orada akım meydana getirir. Foton çoğaltıcı tüpte meydana gelen akım,

örneğin aldığı radyasyonun dozuna ve cinsine bağlıdır. Foton çoğaltıcıdan gelen akım, dijital teknikle sayı olarak ampermeterinin panosunda okunur. Aynı zamanda termolüminesans okuyucusunun ısıtıcı tablasının sıcaklığını ölçen termoçiftin uçları kayıt edicinin X ucuna, ampermeterinin çıkışı kayıt edicinin Y ucuna bağlanarak işime eğrisi çizdirilir. Her ölçüm sonrası, örneklerin background sayımı alınarak aletin duyarlılığı test edilir ve yine her ölçüm için termolüminesans eğrisi alınarak ölçme işlemleri tamamlanır.

6. SONUÇLAR ve DEĞERLENDİRME

Bu bölümde toz kuvars kristali ile beşinci bölümde açıklanan deneylerin sonuçları değerlendirilerek literatürle karşılaştırılmalari yapılacaktır.

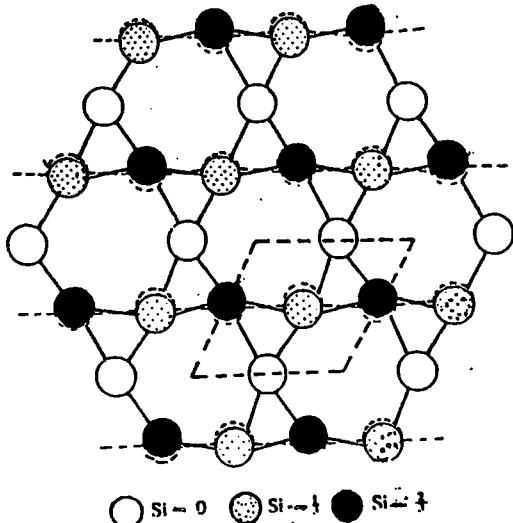
6.1. Kuvars'ın Yapısı

Kuvars, tridimit ve kristobalit olmak üzere üçe ayrılan kuvars grup mineralleri sırasıyla $<870^{\circ}\text{C}$, $870\text{-}1470^{\circ}\text{C}$ ve $>1470^{\circ}\text{C}$ sıcaklık aralıklarında oluşur. Tridimit ve kristobalit normal sıcaklıklarda yarı kararlıdırlar ve doğal mineral olarak doğada bulunurlar. Her üç mineralin α ve β geçişleri vardır. α -kuvars 573°C altındaki sıcaklıklarda, β -kuvars ise 573°C ile 870°C sıcaklıklar arasında kararlı bulunur. α - β geçişleri, her bağın yeniden düzenlenmesi dışında atomik durumun küçük düzenlemelerini içeren bir faz değişimidir. Bundan dolayı, faz değişimi çok hızlıdır ve α 'dan, β 'ya, sonrada tekrar α konumuna geçişlerle meydana gelen kristal çiftlenmesine rağmen bu faz değişimi tamamen tersine çevrilebilir.

Rhombohedral yapıdaki α -durumu, hekzagonal yapıdaki β -kuvars yapısı içinde olarak şekilde gösterilmiştir (Şekil 6.1). Her iki durumda, oksijen atomları, silisyum atomları arasında tetrahedral bir bağ oluştururlar. α -kuvarsda iki Si-O bağı optik eksenle 66° açı yapar ve bir bağın uzunluğu 1.598 \AA^0 dur. Oysa diğer iki Si-O bağı arasında 44° lik açı vardır ve uzunluğu 1.616 \AA^0 dolayındadır. Böylece, oksijenler iki eşit çift olarak silisyumla bağlanırlar.

α -Kuvars tek kristali, 32 nokta grubunda hexagonal yapıdadır. Buna göre $a=b\neq c$, $\alpha=\beta=90^{\circ}$ ve $\gamma=120^{\circ}$ 'dir. Genel olarak, tabanlarında birer piramit bulunan altı kenarlı ve altı yüzeyle prizmalar biçimindedir. Fiziksel özellikleri olarak, kuvars'ın özkütlesi 2.32 g/cm^3 , mineral sertliği 7 ve erime sıcaklığı 1713°C 'dir. Jeolojik zaman boyunca basınç ve nemden etkilenmez ve kimyasal tepkimelere karşı oldukça büyük bir direnç

gösterir. Camsı ve parlaktırlar. Ayrıca kuvars kristali, içerdeği safsızlık atomlarının verdiği renge göre saydam, süt ve dumanlı gibi değişik isimlerle anılır.



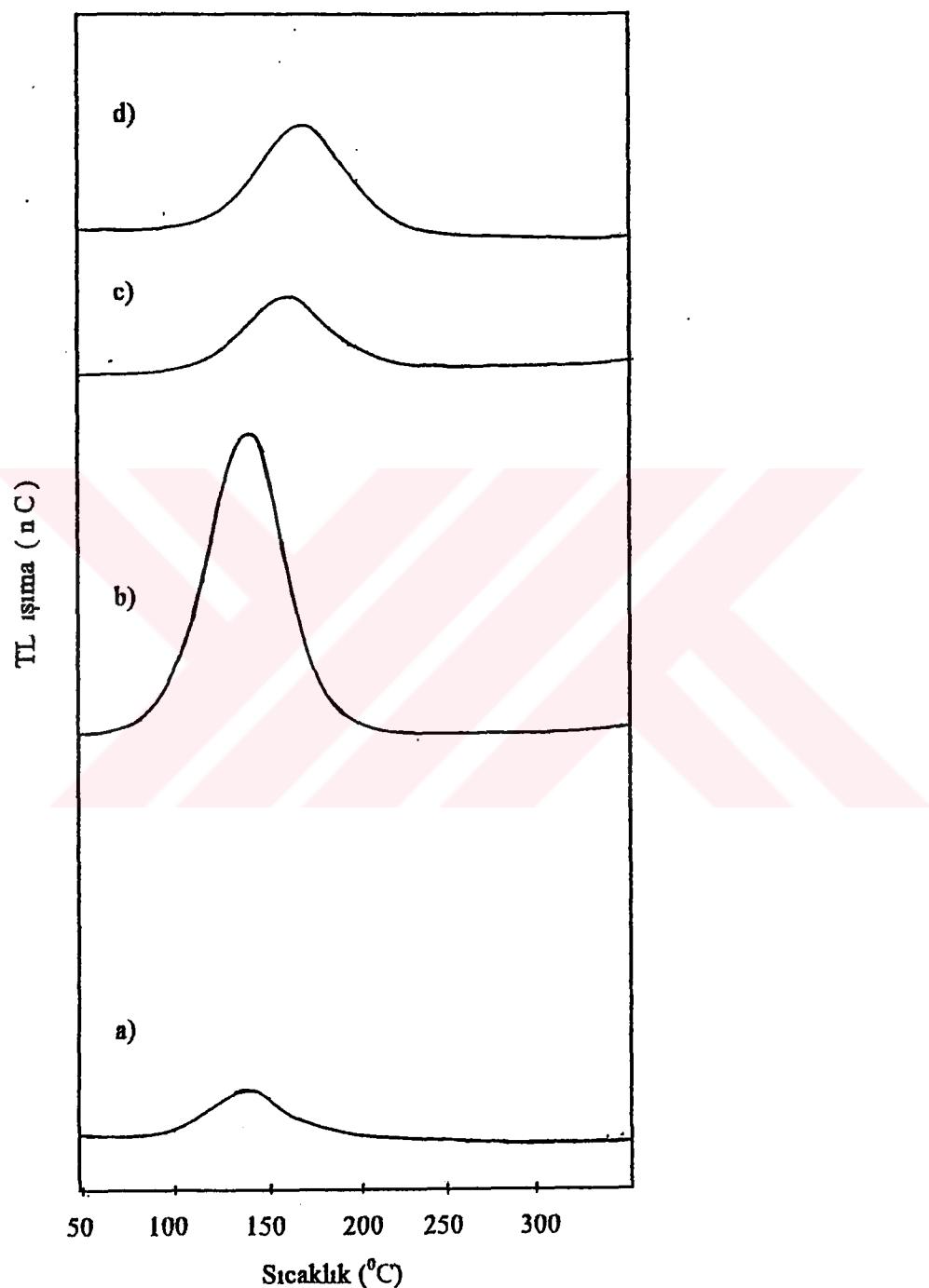
Şekil 6.1 α -kuvars'ın rhombohedral yapısında silisyum atomlarının yerleşiminin gösterimi. β -kuvars'da Si atomlarının yerleşimi kesikli çizgilerle gösterilmiştir.

Silisyum ve oksijen arasındaki elektronegatif fark, %40 iyonik, %60 kovalent bir bağ verir . Buradaki kovalent yapı, daha katı yapıda oluşmuş kuvars mineralini verir ve örgü atomlarının makroskopik difüzyonunu önler. Ancak dislokasyonlar ve has nokta kusurları bulunur. Bunların kompleks yapıları vardır ve bu tür kuvarlar oldukça saf olarak bilinirler. Kayıp örgü atomları etrafında bulunan kirliliklere yerleşme eğilimindedirler. Kuvars'da bağların karışık iyonik ve kovalent doğası, SiO bağıının kopmasını sağlayan radyasyon etkisiyle meydana gelir.

6.2. Isıl- İşıma Eğrileri

Isıl işıma eğrisi olarak adlandırılan ve TL sayımlarının sıcaklığa bağlı olarak değişimlerini gösteren grafikler, incelenen her parametre için ayrı ayrı çizdirilerek değerlendirilmiştir. Şekil 6.2-6.12 arasındaki isıl-ışıma eğrileri anilasyon sıcaklıklarını, ısıtma hızları ve ışınlama dozlarına bağlı olarak sunulmaktadır. Pik altındaki alan

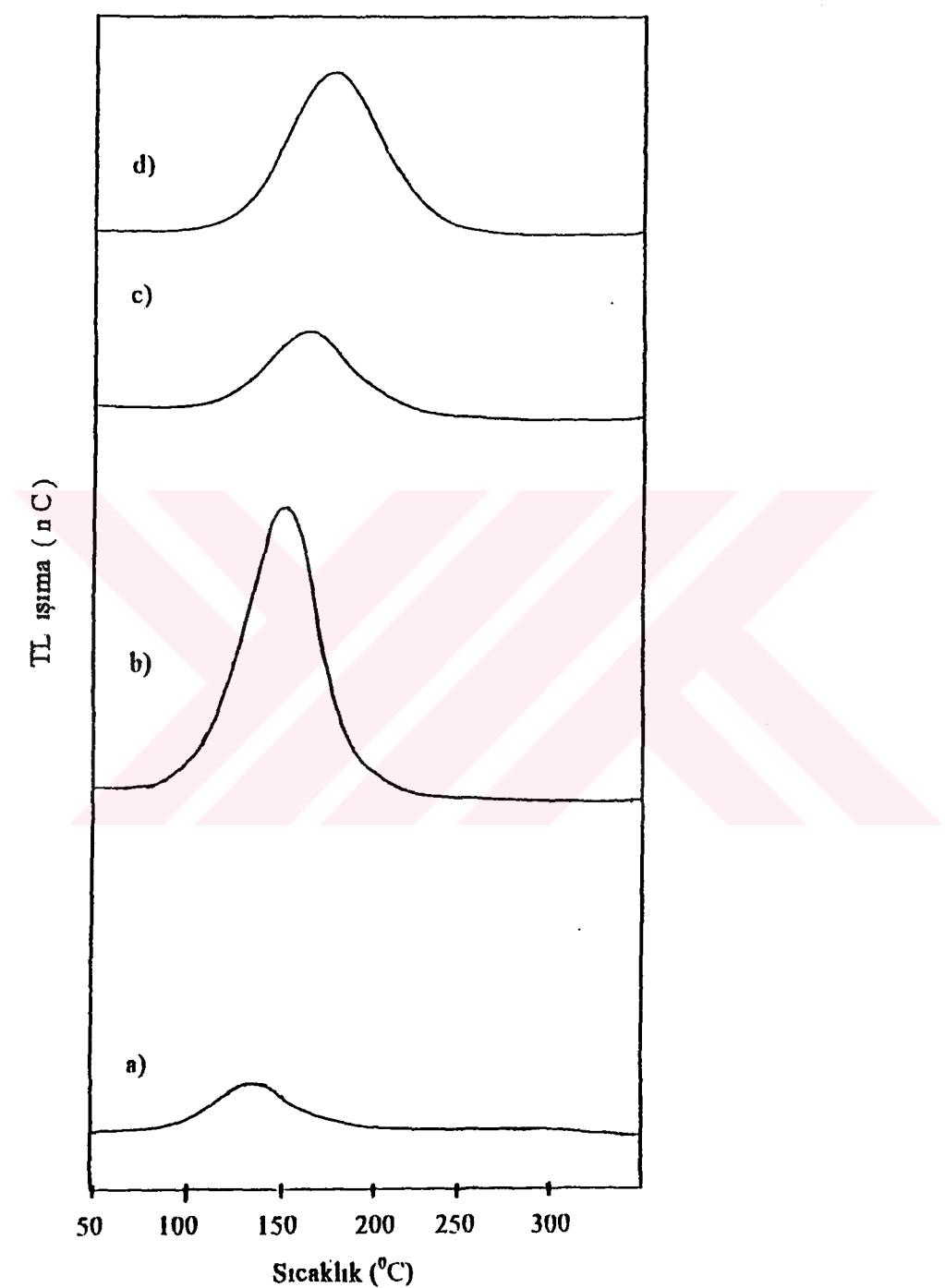
Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 100°C
 İşinlama Dozu : 0.16kGy



Şekil 6.2. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısıtma eğrileri ve TL sayımları

- a) $\beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}$, b) $\beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}$, c) $\beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}$, d) $\beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$
 TL = 3102nC TL = 11710nC TL = 2808nC TL = 3063nC

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 200°C
Işınlama Dozu : 0.16kGy



Şekil 6.3. 200°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısıma eğrileri ve TL sayımları

a) $\beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}$,

b) $\beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}$,

c) $\beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}$,

d) $\beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$

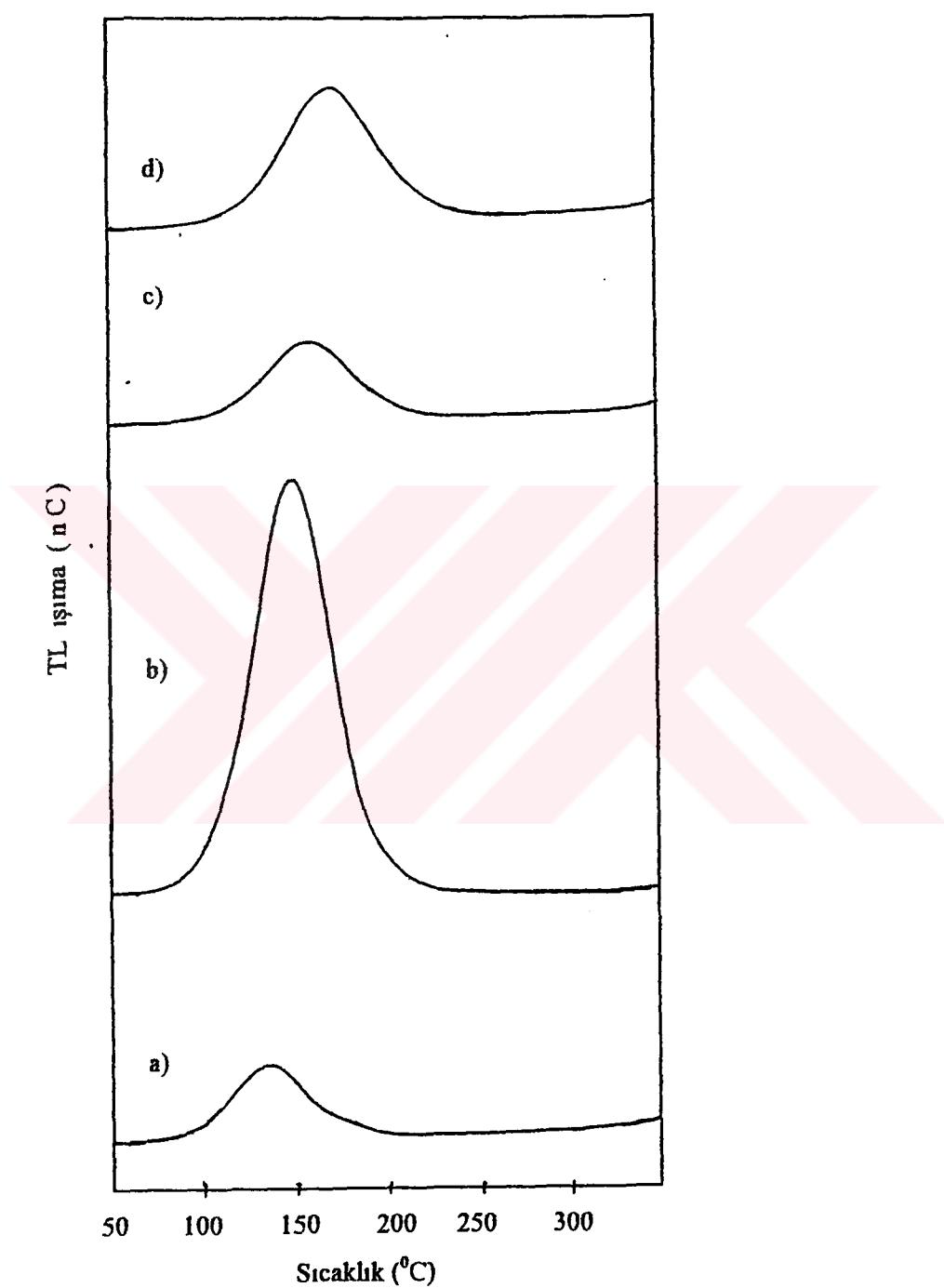
TL = 2257 nC

TL = 9253 nC

TL = 3008 nC

TL = 4337 nC

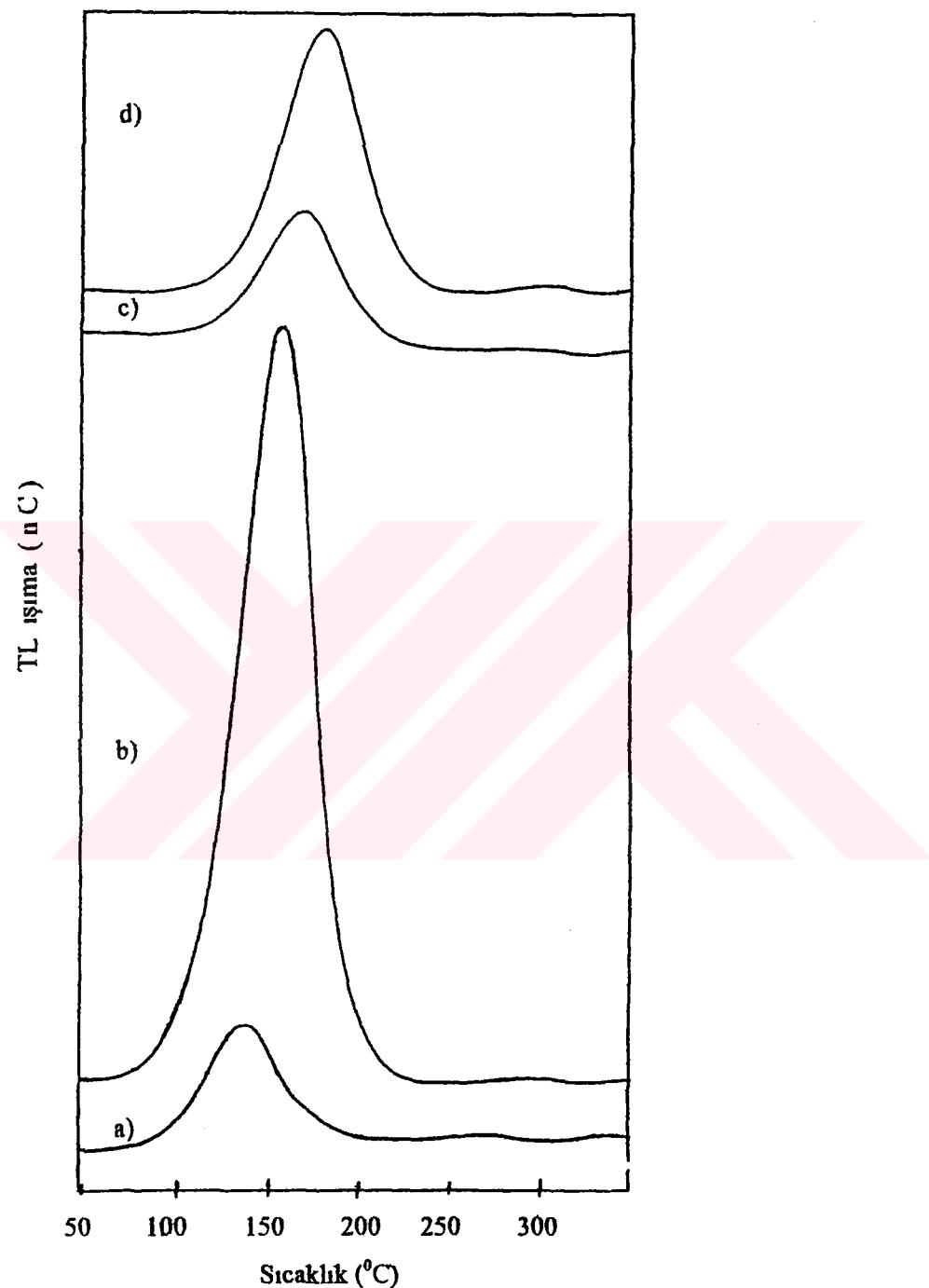
Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 300°C
 İşinlama Dozu : 0.16kGy



Şekil 6.4. 300°C de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısıma eğrileri ve TL sayımları

$$\begin{array}{llll} \text{a)} \beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}, & \text{b)} \beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}, & \text{c)} \beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}, & \text{d)} \beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s} \\ \text{TL} = 4316\text{ nC} & \text{TL} = 13533\text{ nC} & \text{TL} = 2744\text{ nC} & \text{TL} = 3565\text{ nC} \end{array}$$

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 100°C
 İşinlama Dozu : 0.33kGy



Şekil 6.5. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışınma eğrileri ve TL sayımları

$$\text{a)} \beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{b)} \beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{c)} \beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{d)} \beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$$

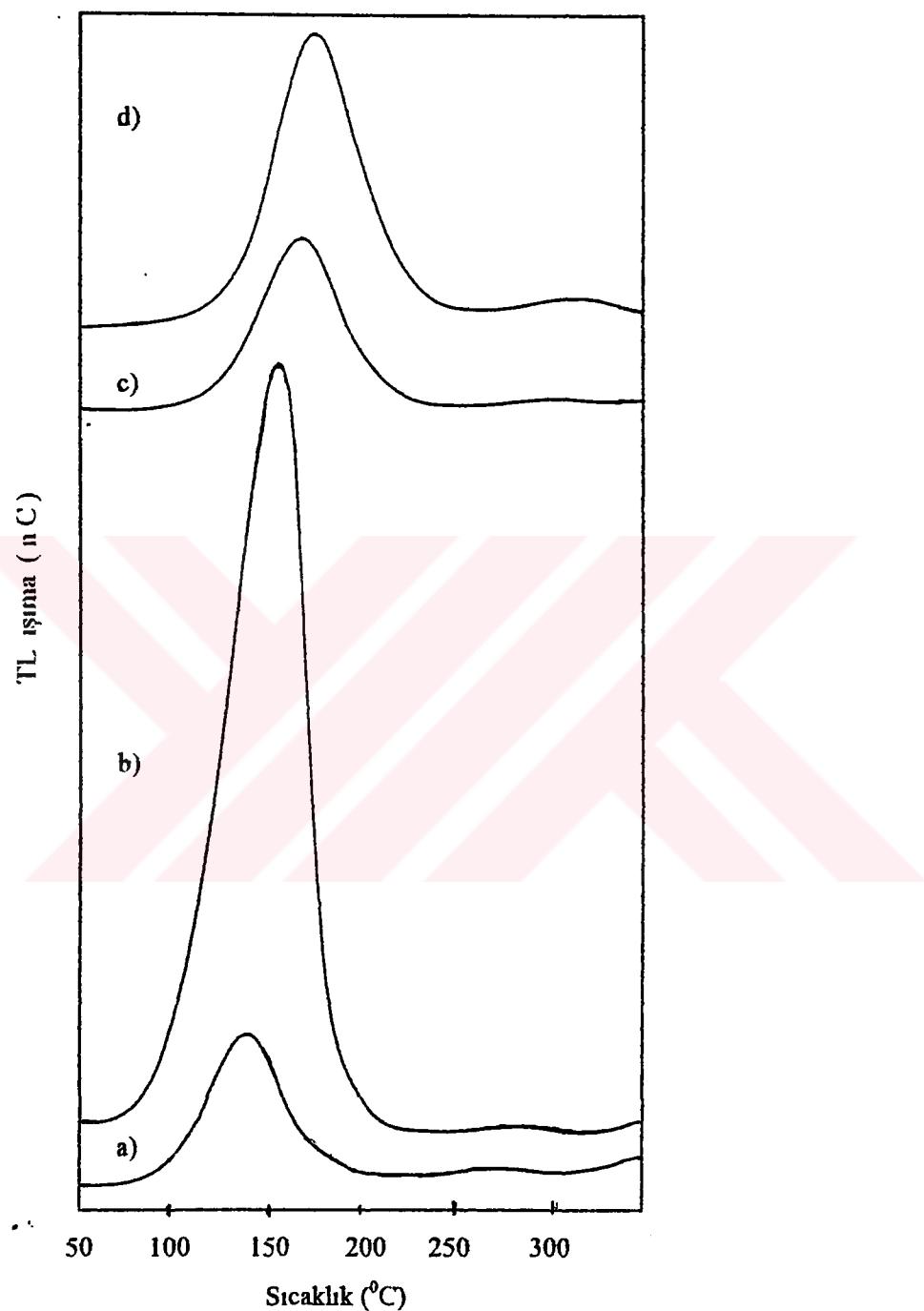
$$\text{TL} = 7314 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 25772 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 5098 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 7458 \text{ nC}$$

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 200°C
 İşinlama Dozu : 0.33 kGy



Şekil 6.6. 200°C de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen işüma eğrileri ve TL sayımları

a) $\beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}$, b) $\beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}$, c) $\beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}$, d) $\beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$

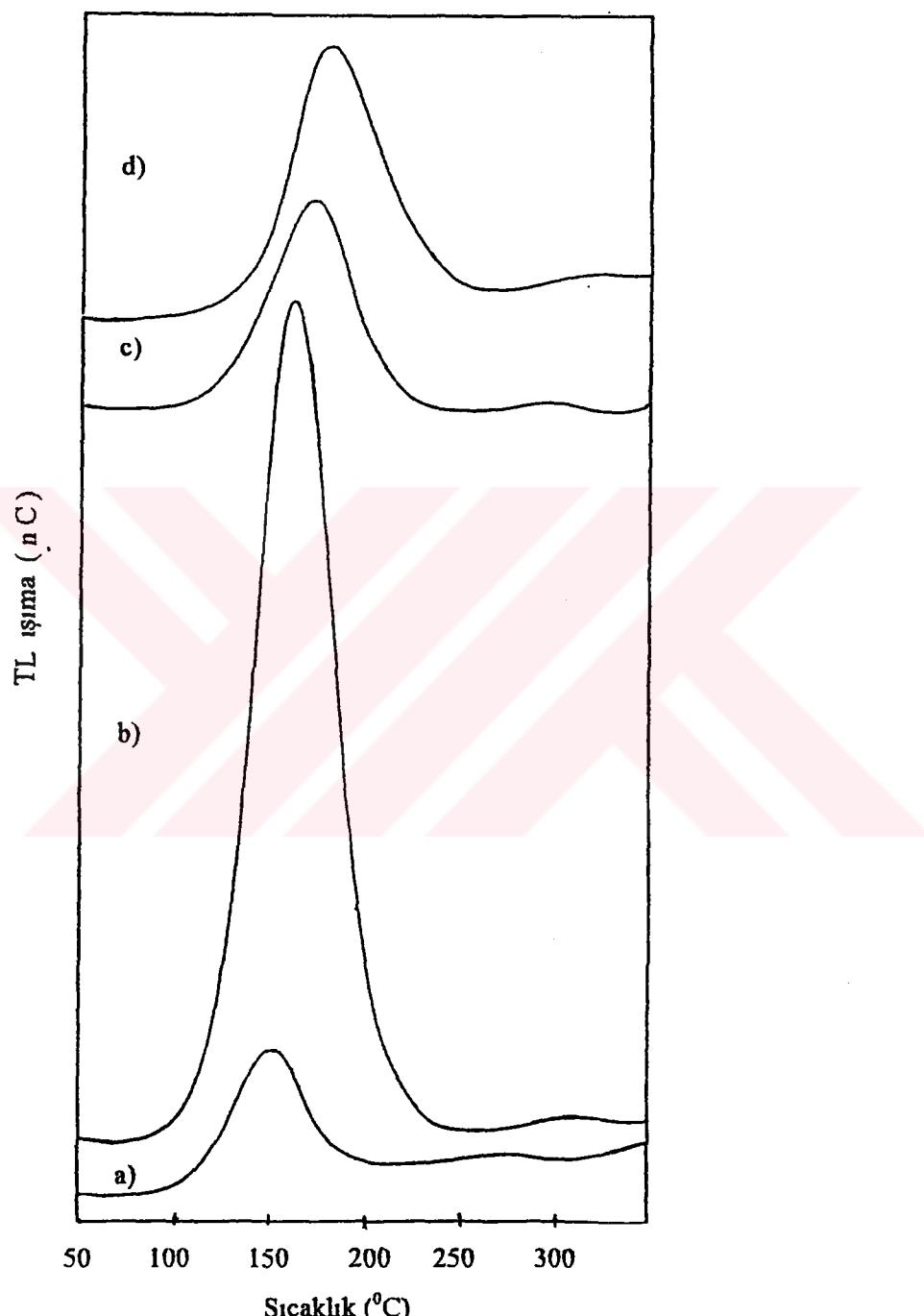
TL = 8686 nC

TL = 26425 nC

TL = 6222 nC

TL = 7836 nC

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 300°C
 İşinlama Dozu : 0.33kGy



Şekil 6.7. 300°C de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısıma eğrileri ve TL sayımları

$$\text{a)} \beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s},$$

$$\text{b)} \beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s},$$

$$\text{c)} \beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s},$$

$$\text{d)} \beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$$

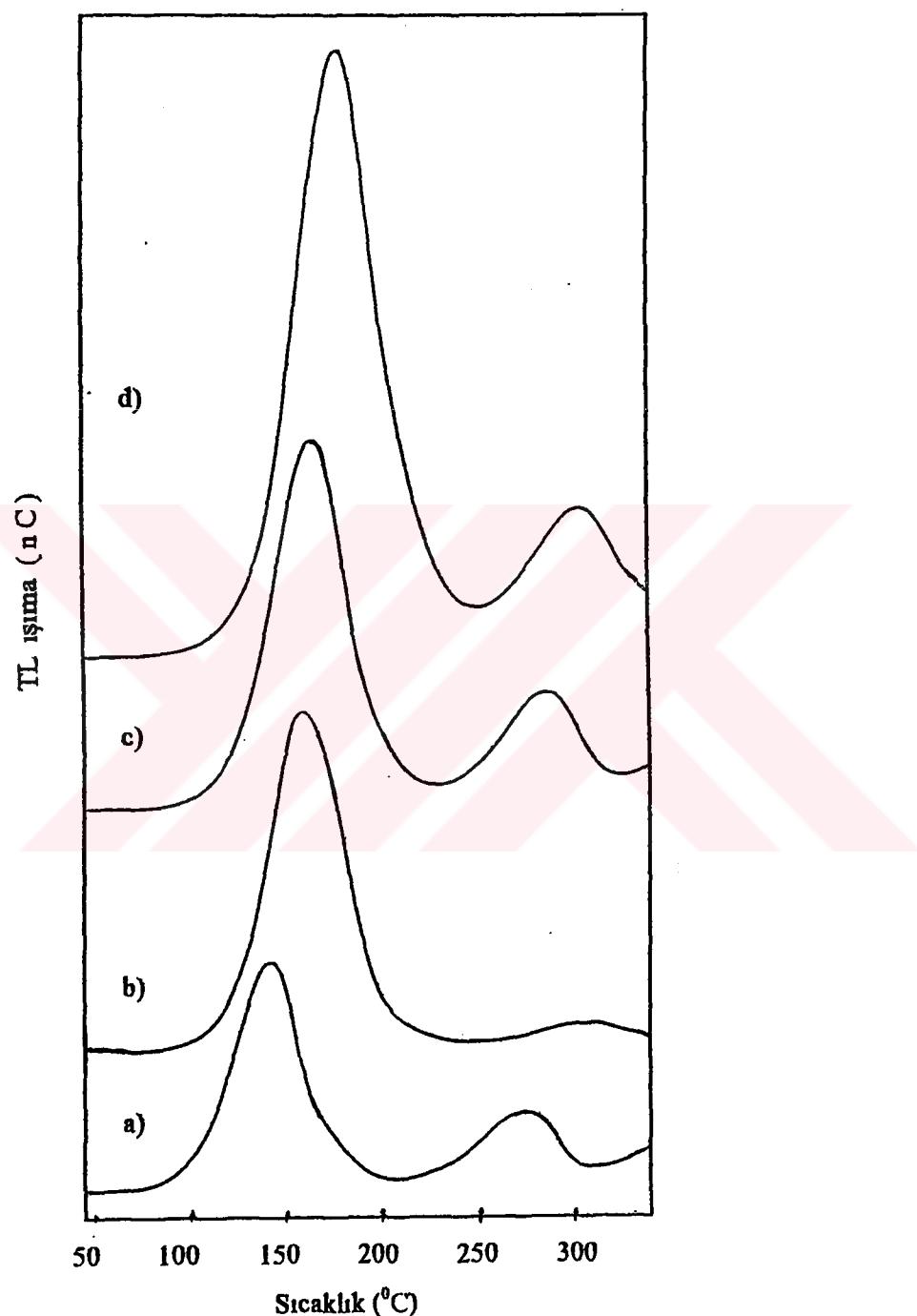
$$\text{TL} = 8307\text{ nC}$$

$$\text{TL} = 28819\text{ nC}$$

$$\text{TL} = 7644\text{ nC}$$

$$\text{TL} = 7171\text{ nC}$$

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 100°C
 İşinlama Dozu : 0.66kGy



Şekil 6.8. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışım eğrileri ve TL sayımları

$$\text{a)} \beta_1 = 3.1 \text{ }^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{b)} \beta_2 = 5.2 \text{ }^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{c)} \beta_3 = 7.1 \text{ }^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{d)} \beta_4 = 9.4 \text{ }^{\circ}\text{C/s}$$

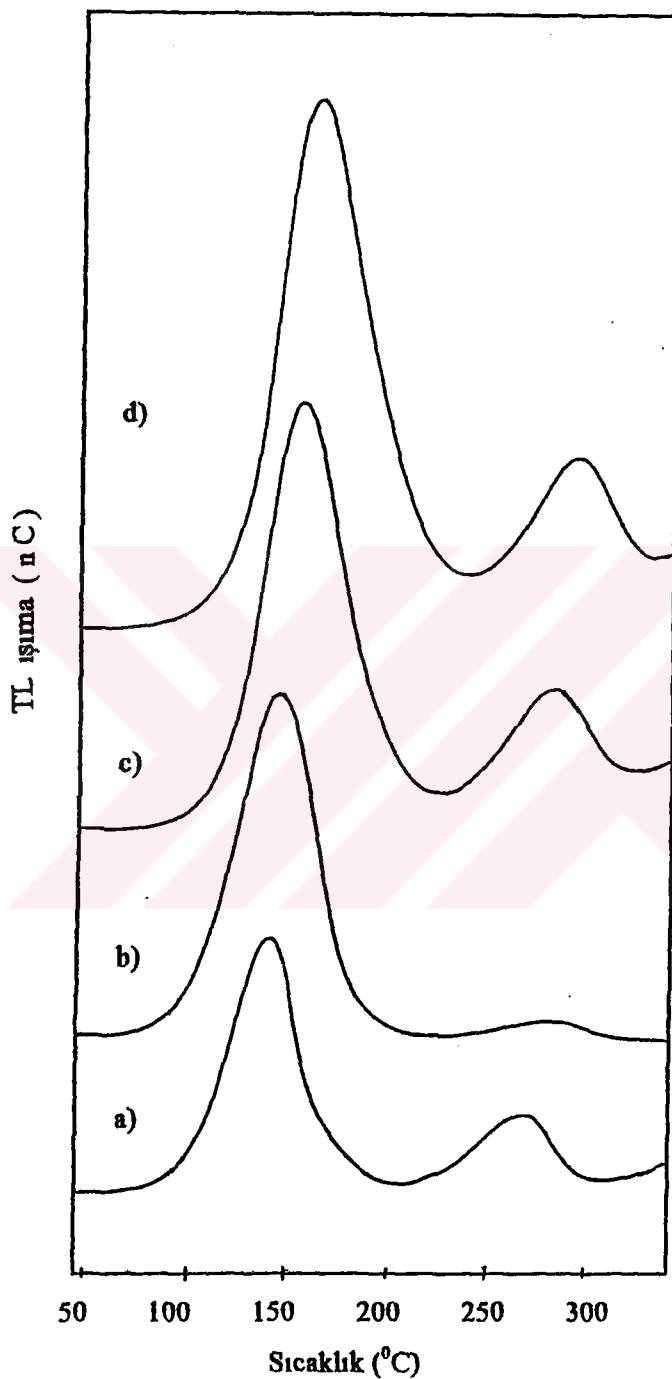
$$\text{TL} = 16309 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 59681 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 14497 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 17054 \text{ nC}$$

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 200°C
 İşınlama Dozu : 0.66kGy



Şekil 6.9. 200°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışımıma eğrileri ve TL sayımları

$$\text{a)} \beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{b)} \beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{c)} \beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{d)} \beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$$

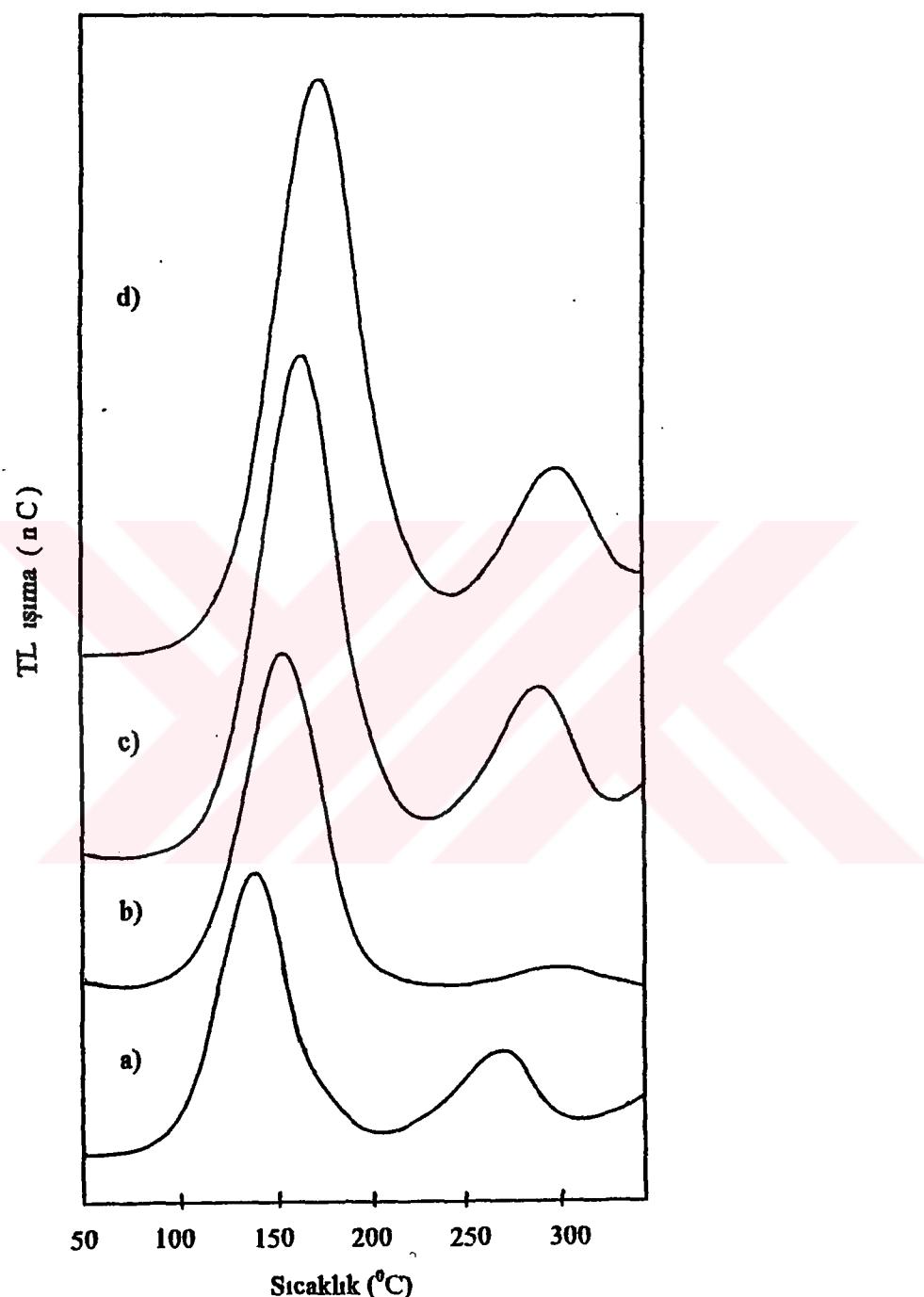
$$\text{TL} = 19459 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 59998 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 19939 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 19513 \text{ nC}$$

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 300°C
 İşinlama Dozu : 0.66kGy



Şekil 6.10. 300°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile işinlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışınma eğrileri ve TL sayımları

a) $\beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}$, b) $\beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}$, c) $\beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}$, d) $\beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$

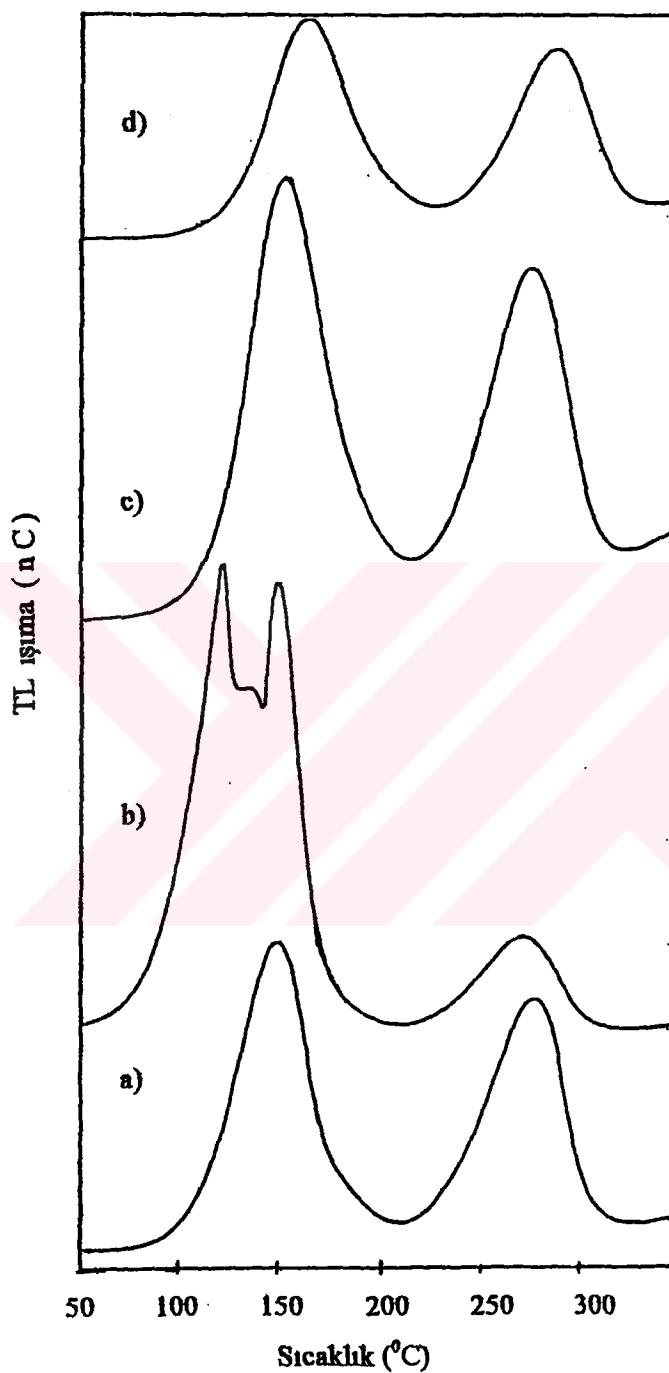
TL = 16411 nC

TL = 58955 nC

TL = 16226 nC

TL = 15100 nC

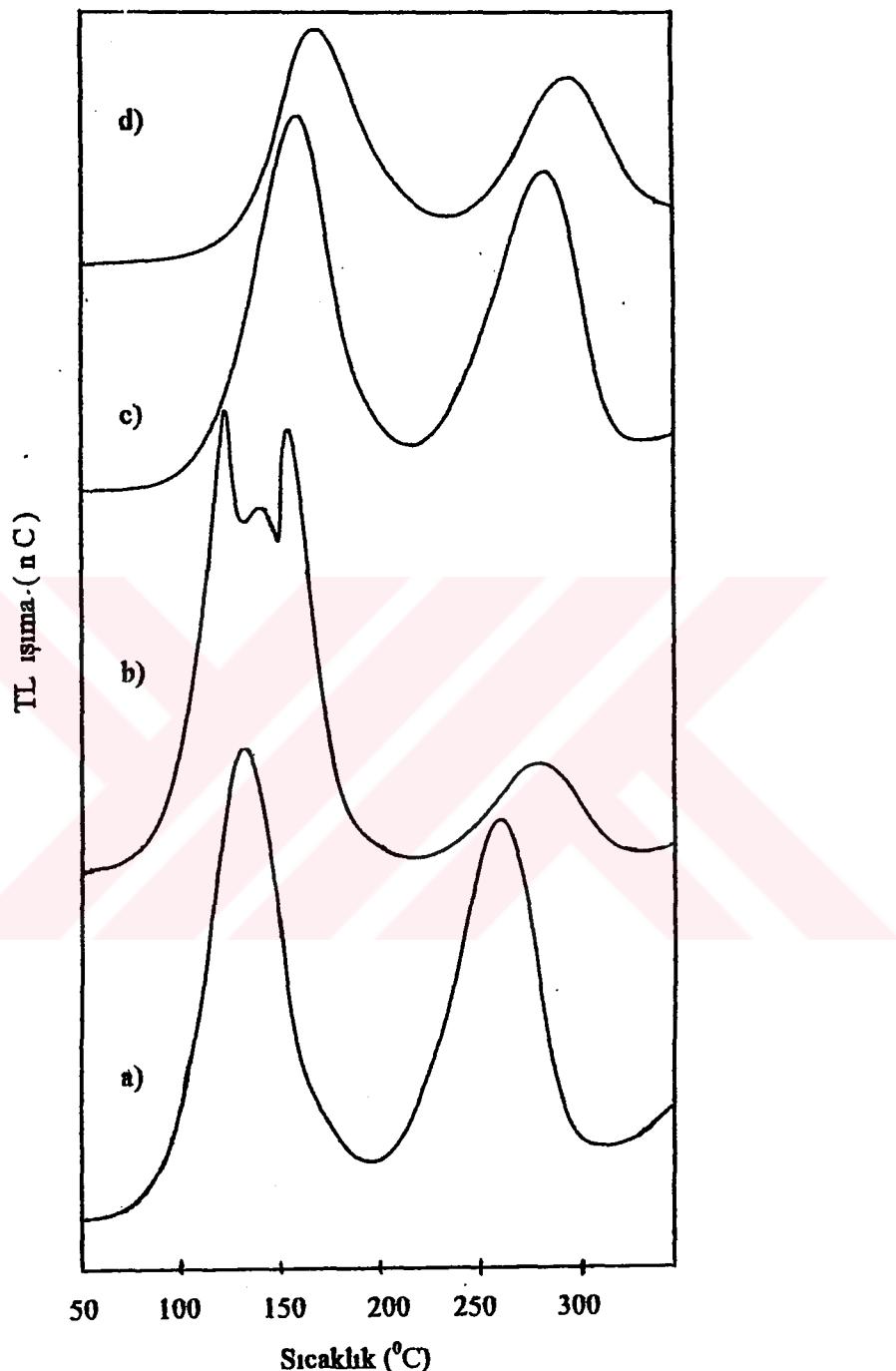
Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 100°C
 Işınlama Dozu : 0.99 kGy



Şekil 6.11. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ışınma eğrileri ve TL sayımları

- | | | | |
|---------------------------------------|---------------------------------------|---------------------------------------|--------------------------------------|
| a) $\beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s},$ | b) $\beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s},$ | c) $\beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s},$ | d) $\beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$ |
| TL = 27430 nC | TL = 117156 nC | TL = 41946 nC | TL = 40526 nC |

Aniliye (tavlama) Sıcaklığı : 300°C
 Işınlama Dozu : 0.99kGy



Şekil 6.12. 300°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısıtma eğrileri ve TL sayımları

$$\text{a)} \beta_1 = 3.1^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{b)} \beta_2 = 5.2^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{c)} \beta_3 = 7.1^{\circ}\text{C/s}, \quad \text{d)} \beta_4 = 9.4^{\circ}\text{C/s}$$

$$\text{TL} = 40538 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 125875 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 37483 \text{ nC}$$

$$\text{TL} = 39108 \text{ nC}$$

ölçülen TL miktarını nC (nanocoulomb) cinsinden vermektedir (Tablo 6.1). Bu alan aynı zamanda örneklerin ışınlama dozu ile orantılıdır. Bazı parametreler (ısıtma hızı, anilasyon sıcaklığı) bu alanın veya bir başka deyişle sayımlarının az veya çok olmasında etkili rol oynamaktadır. Bu nedenle, uygulanan radyasyon dozunun belirlenmesinde önemli bir yeri olan pik altındaki alanların bu parametrelere bağlı olarak değişimi incelenmiştir.

Tablo 6.1. 100 °C, 200 °C, 300 °C aniliye edilen kuvars mineraline ışınlanan radyasyon dozu ile TL sayımının değişimi.

Doz (kGy)	β (°C/s)	100 °C	200 °C	300 °C
		TL Sayım(nC)	TL Sayım(nC)	TL Sayım(nC)
0.16	3.1	3102	2257	4316
	5.2	11710	9253	13533
	7.1	2808	3008	2744
	9.4	3063	4337	3565
0.33	3.1	7314	8686	8307
	5.2	25772	26425	28819
	7.1	5098	6222	7644
	9.4	7458	7836	7171
0.66	3.1	16309	19459	16411
	5.2	59681	59998	58955
	7.1	14697	19939	16226
	9.4	17054	19513	15100
0.99	3.1	27430	-----	40538
	5.2	117156	-----	125875
	7.1	41946	-----	37483
	9.4	40526	-----	39108

Tablo 6.1'de elde edilen sonuçlar liste halinde sunulmaktadır. Burada kayda değer olan iki husus vardır. Birincisi TL sayımların radyasyon dozu arttıkça artıyor olması, ikinci husus da 5.2 °C/s ısıtma hızında sayılan örneklerin ışınlamadan hemen sonra, diğerlerinin ise ışınlamadan 19 saat sonra yapılmış olmasıdır. Bu zaman farkı çok çarpıcı bir sonuca varmamızı sağlamıştır. Tuzaklara yakalanan elektronların yaklaşık (1/ 3,45)'i tuzaklarda kaldığı görülmüştür. Yaklaşık %28'i 19 saat içinde tuzaklardan

kurtularak yeniden birleşme yapmışlardır. Bunun anlamı tuzaklardan kurtulan elektronların ilk 24 saat içinde durgun hale geçmediği ve “Fading”e uğradığıdır (Buluş 1995). Bundan sonraki bölümlerde bu ilişkiler grafikler ve elde edilen diğer bulgular eşliğinde incelenecaktır.

Şekil 6.2, 6.3 ve 6.4’de yer alan ısil ışına eğrileri 0.16 kGy gama dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızlarındaki ($\beta_1= 3.1 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, $\beta_2= 5.2 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, $\beta_3= 7.1 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, $\beta_4= 9.4 \text{ } ^\circ\text{C/s}$) ve farklı anilasyon sıcaklıklarındaki (100°C , 200°C , 300°C) değerlerine göre çizdirilmiştir. Görüldüğü gibi 0.16 kGy’ye ışınlanmış kuvars örneklerin bütün ısil ışına eğrileri tek bir karakteristik pik vermektedir. Anilasyon sıcaklarının okuma üzerine anlamlı bir etkisi görülmemiştir.

Şekil 6.5, 6.6 ve 6.7’de yine farklı ısıtma hızlarında, farklı anilasyon sıcaklıklarında aniliye edilmiş ve 0.33 kGy gama ışını dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ısil ışına eğrileri görülmektedir. Bu radyasyon dozunda da 0.16 kGy’de olduğu gibi ısil ışının eğrileri tek bir karakteristik pik vermektedir. Doz arttıkça ısil ışına eğrilerinde ikinci pik oluşumları gözlenmektedir.

Şekil 6.8, 6.9 ve 6.10’da sırasıyla 100°C , 200°C ve 300°C ’de aniliye edilmiş kuvars kristalinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısil ışına eğrileri görülmektedir. Bu radyasyon dozundaki ısil ışına eğrilerinde iki tane karakteristik pik görülmektedir ve hatta doz arttıkça ısil ışına eğrilerinde üçüncü pik oluşumları da gözlenmektedir.

Şekil 6.11 ve 6.12’de sırasıyla 100°C ve 300°C ’de aniliye edilmiş kuvars kristalinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarında elde edilen ısil ışına eğrileri görülmektedir. 0.99 kGy’ye ışınlanmış ısil ışına eğrilerinde 0.66 kGy’de olduğu gibi iki tane karakteristik pik görülmektedir.

Ancak bu ışına dozunda (0.99 kGy) ısıtma hızı $5.2 \text{ } ^\circ\text{C/s}$ ile alınmış olan ısil ışına eğrisinin birinci pikinde çatallaşma görülmektedir. Aynı türde ısil ışına eğrilerine literatürde de rastlanmıştır (Medlin 1962).

6.3. Doz-TL Sayım İlişkisi

Doz-TL sayımı (pik yüksekliği) ilişkisi Şekil 6.13'de verilmektedir. Buradan da görüldüğü gibi doz arttıkça TL sayım artmakta ve dolayısıyla doz cevap eğrisinde sürekli bir lineerlik gözlenmektedir. Bunun anlamı kuvars mineralinin radyasyon dozuna çok duyarlı olduğu ve dolayısıyla radyasyon dozimetresinde güvenilir olarak kullanılabileceğidir.

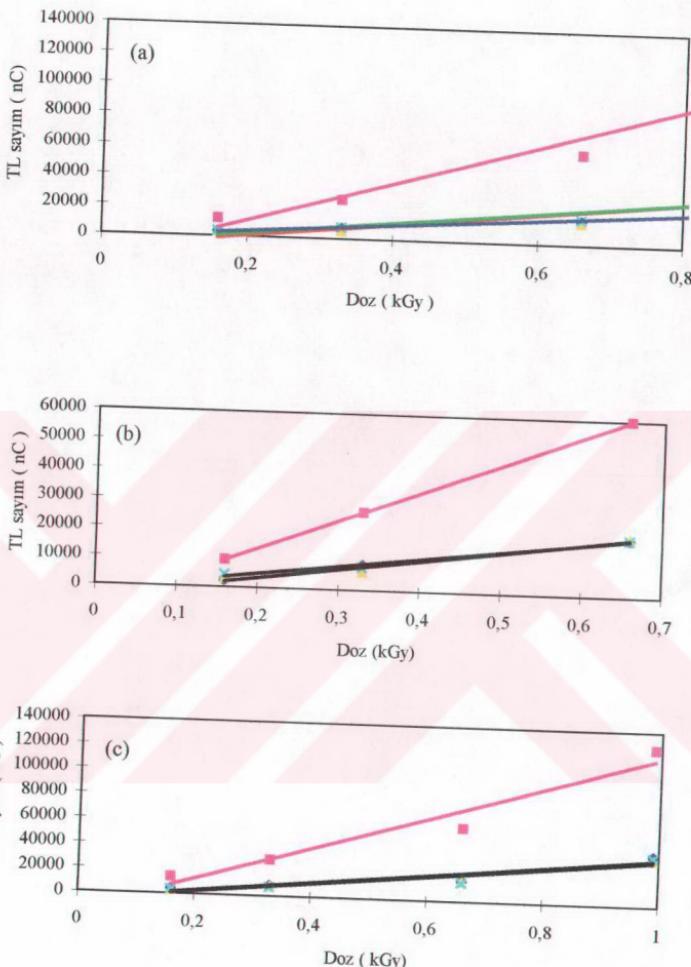
100°C , 200°C , 300°C 'de aniliye edilmiş kuvars minerallerinin değişik ısıtma hızlarında alınmış olan doz-TL sayım (cevap) ilişkisinde ısıtma hızlarının TL sayım miktarında ne denli etkili olduğu araştırılmıştır. Bu amaçla farklı sıcaklıklarda aniliye edilmiş örneklerin farklı ısıtma hızlarında doz-TL sayım ilişkisi incelenmiştir. Yine her anilasyon sıcaklığı için $3.1\ ^{\circ}\text{C/s}$, $7.1\ ^{\circ}\text{C/s}$, $9.4\ ^{\circ}\text{C/s}$ ısıtma hızlarında neredeyse çakışma düzeyinde bir ilişki söz konusudur. Buna karşılık $5.2\ ^{\circ}\text{C/s}$ ısıtma hızında doz-TL ilişkisinde görülen farklılık sayımların ışınlamadan hemen sonra alınmasındandır. ve bu nedenle $5.2\ ^{\circ}\text{C/s}$ 'de alınan bu fazla sayımların fazla anlamı yoktur.

Elde edilen TL sayımları, farklı sıcaklıklarda aniliye edilen örneklerin sayım verimlerinin $300\ ^{\circ}\text{C}$ 'dekinde biraz fazla olduğunu olduğunu göstermektedir. Bir başka deyişle tuzak sayıları her anilasyon sıcaklığında çok farklı elde edilmemiştir.

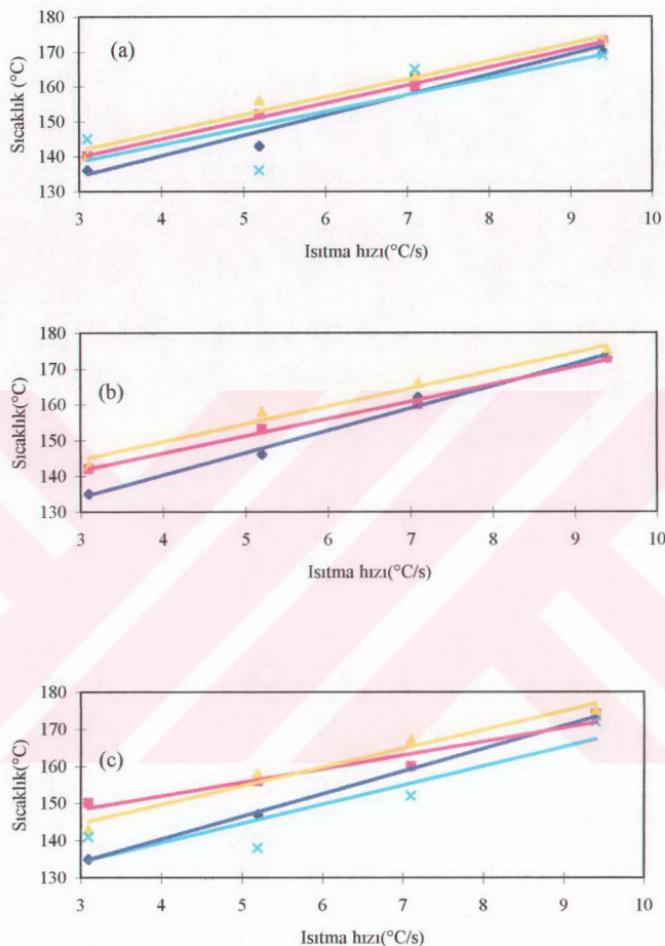
6.4. Isıtma Hızı-Pik Sıcaklığı Arasındaki İlişki

Isıtma hızına bağlı olarak doz bağımlı piklerde hemen hemen tüm ısıl ışına egrilerinde sağa kayma gösterdiği tespit edilmiştir. Bu sağa kayma olayı, pik sıcaklıklarında da kayma meydana gelmesine neden olmaktadır. Buna ilişkin şekiller Şekil 6.14' de görülmektedir.

Üç farklı anilasyon hızında çizilen ısıtma hızı- sıcaklık kaymaları hemen hemen aynı değişimi göstermektedir. Bazı sistematik hatalar gözardı edilirse, her doz için sıcaklık kaymasının aynı miktarda olduğu gözlenmektedir. Bu nedenle sıcaklık kayması radyasyon dozu ve tuzak parametrelerinin değerlendirilmeleri üzerinde fazla



Şekil 6.13. Kuvars mineralinin $3.1\text{ }^{\circ}\text{C/s}$ (Mavi), $5.2\text{ }^{\circ}\text{C/s}$ (Pembe), $7.1\text{ }^{\circ}\text{C/s}$ (Kırmızı), $9.4\text{ (Yeşil)}^{\circ}\text{C/s}$ ısıtma hızı değerinde ışınlama dozu ile TL sayımları arasındaki ilişki (doz-etki ilişkisi). Anilasyon sıcaklıklarları (a) 100°C (b) 200°C (c) 300°C



Şekil 6.14. Kuvars mineralini 0.16 kGy (lacivert), 0.33 kGy (pembe), 0.66 kGy (sarı), 0.99 kGy (mavi) gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızlarına göre elde edilen maksimum pik sıcaklık değerleri. Anilasyon sıcaklıkları (a) 100^0C (b) 200^0C (c) 100^0C

etkili görünmemektedir. Ancak karakteristik ıslı-ışırma eğrisinde pik sıcaklıklarının belirtilmesi önemlidir. Kayma görülen pik sıcaklıklarında ise ısıtma hızının rolü mutlaka belirtilmelidir.

Daha sonraki bölümde de ele alındığı gibi ısıtma sıcaklığına bağlı olarak pik sıcaklıklarının kayması, tuzak derinliklerinin belirlenmesinde bir yöntem olarak kullanılacaktır.

6.5.Farklı Isıtma Hızları Yöntemiyle Tuzak Parametrelerinin Belirlenmesi

Bu yöntemde, farklı ısıtma hızları için ıslı ışırma eğrisinin maksimum noktalarına karşılık gelen sıcaklıklar ölçülecek tuzak parametreleri belirlenir. Bu amaçla örnekler önce 0.16 kGy, 0.33 kGy, 0.66 kGy, 0.99 kGy doz alacak şekilde ışınlandılar. Daha sonra ışınlanan kristallerin herbiri için $\beta_1 = 3.1 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, $\beta_2 = 5.2 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, $\beta_3 = 7.1 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, $\beta_4 = 9.4 \text{ } ^\circ\text{C/s}$, ısıtma hızlarında ışırma eğrileri çizdirildi (Şekil 6.2 ile Şekil 6.12 arasında) ve bu ısıtma hızı değerlerindeki ışırma piklerinin maksimum değerlerine karşılık gelen T_m sıcaklıkları ölçüldü. Bulunan değerler Tablo 6.2, Tablo 6.3, Tablo 6.4, Tablo 6.5'de verildi.

Tablo 6.2. 0.16 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.

Anilasyon sıcaklığı ($^\circ\text{C}$)	β ($^\circ\text{C/s}$)	T_m (K)	$\ln \frac{T_m^2}{\beta}$ (K.s)
100	3.1	409	10.89
	5.2	416	10.41
	7.1	436	10.19
	9.4	443	9.94
200	3.1	408	10.89
	5.2	419	10.42
	7.1	435	10.19
	9.4	446	9.95
300	3.1	408	10.89
	5.2	420	10.43
	7.1	433	10.18
	9.4	446	9.95

Tablo 6.3. 0.33 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.

Anilasyon sıcaklığı (°C)	β (°C/s)	T _m (K)	$\ln \frac{T_m^2}{\beta}$ (K.s)
100	3.1	413	10.91
	5.2	425	10.45
	7.1	433	10.18
	9.4	446	9.95
200	3.1	415	10.95
	5.2	426	10.46
	7.1	433	10.18
	9.4	446	9.95
300	3.1	423	10.96
	5.2	429	10.47
	7.1	433	10.18
	9.4	447	9.96

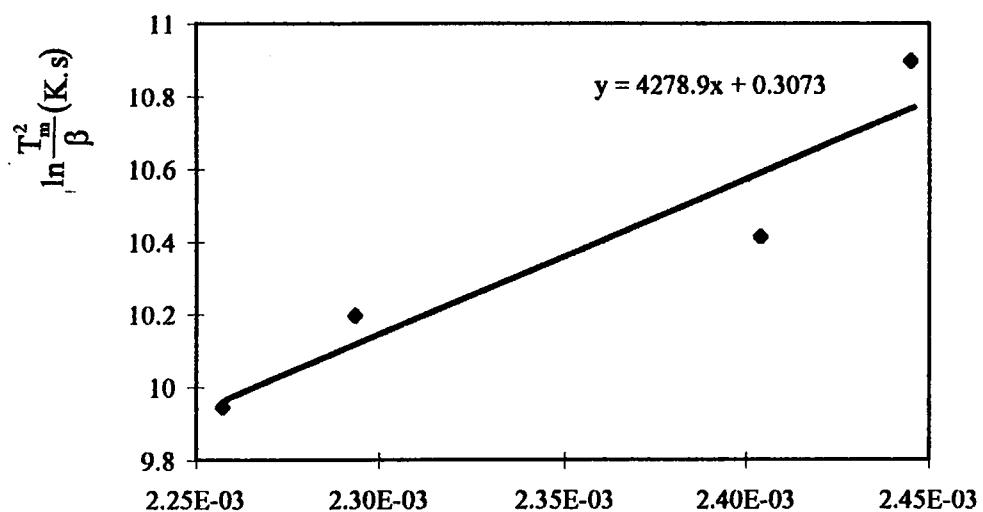
Tablo 6.4. 0.66 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ışınma pikinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.

Anilasyon sıcaklığı (°C)	β (°C/s)	T _m (K)	$\ln \frac{T_m^2}{\beta}$ (K.s)
100	3.1	416	10.91
	5.2	429	10.47
	7.1	436	10.19
	9.4	446	9.95
200	3.1	416	10.92
	5.2	431	10.48
	7.1	439	10.20
	9.4	448	9.96
300	3.1	416	10.93
	5.2	431	10.49
	7.1	440	10.21
	9.4	448	9.96

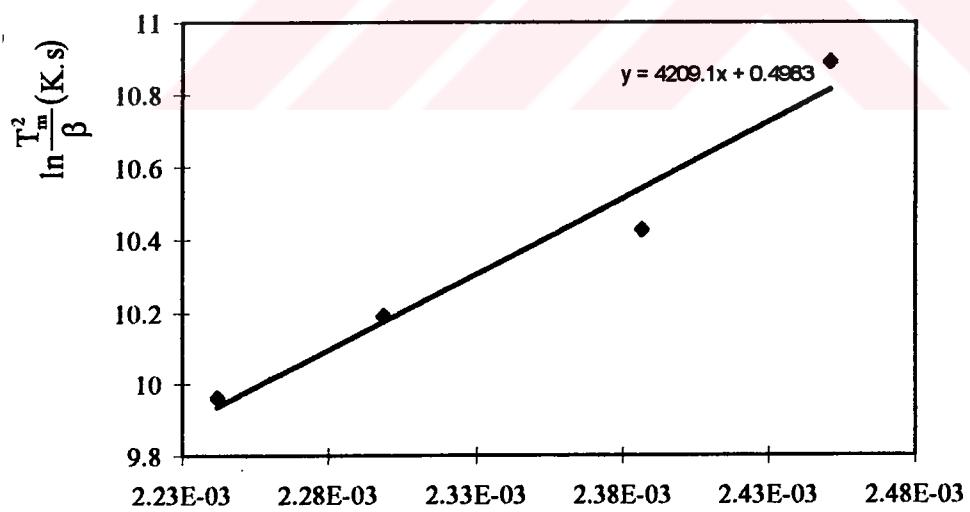
Tablo 6.5. 0.99 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin ışına pikinin farklı ısıtma hızı değerlerinde ölçüm parametreleri.

Anilasyon sıcaklığı (°C)	β (°C/s)	T_m (K)	$\ln \frac{T_m^2}{\beta}$ (K.s)
100	3.1	418	10.93
	5.2	409	10.37
	7.1	438	10.20
	9.4	442	9.94
300	3.1	414	10.92
	5.2	411	10.38
	7.1	425	10.14
	9.4	445	9.95

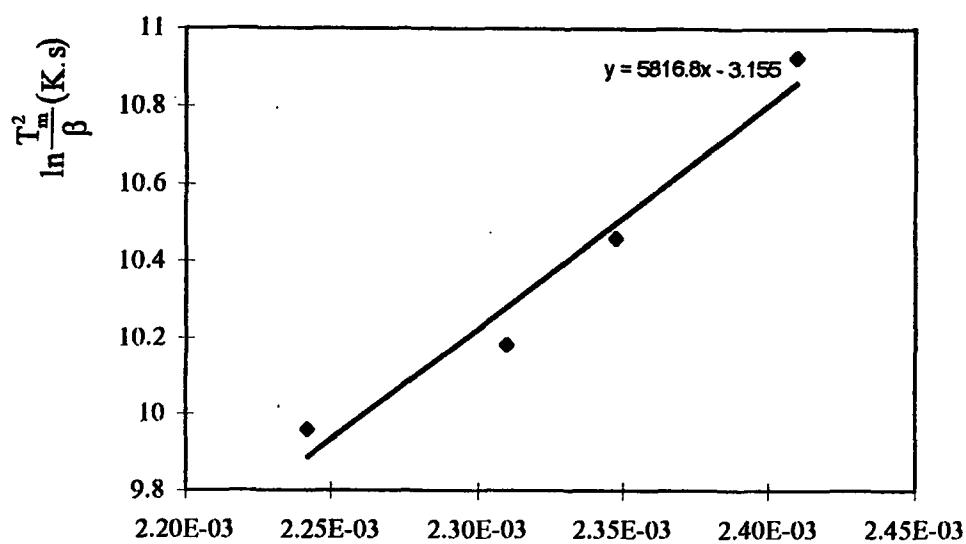
Her ışima için $1/T_m$ değerine karşı $\ln T_m^2 / \beta$ değerleri çizildi. Bunlar her ışima piki için Şekil 6.15 ile 6.25 arasında gösterilmiştir. Doğruların eğiminden her ışima pikine karşılık gelen tuzakların E derinliği bulundu. Bulunan E değerleri ve her ışima piki için b değeri yardımıyla (3.34) eşitliğinden frekans faktörü olan s değerleri belirlendi (Engin ve Güven 1997). Bu değerler Tablo 6.6-6.8 arasında verilmiştir. Bulunan enerji tuzak değerleri ve frekans faktörlerinin değerlendirmeleri sonuç bölümünde yapılmıştır.



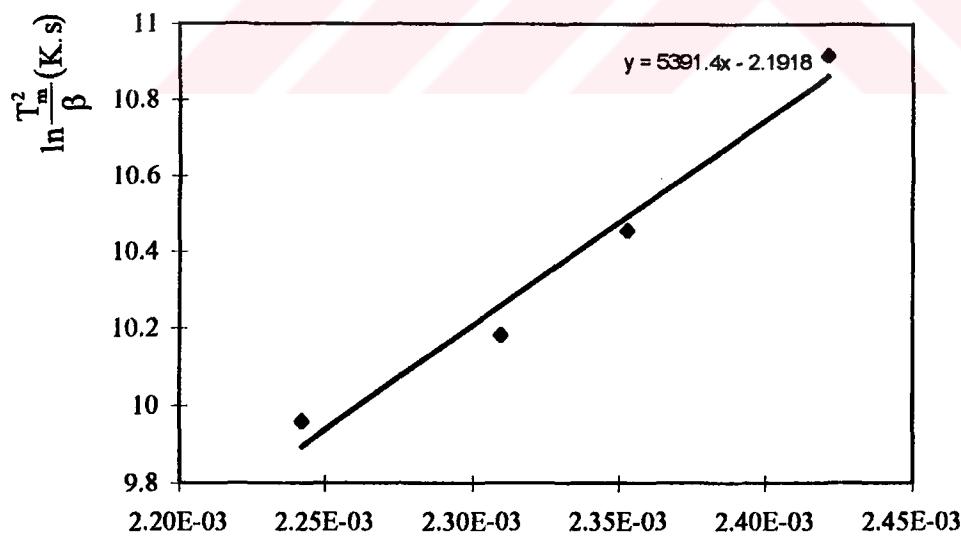
Şekil 6.15. 100°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



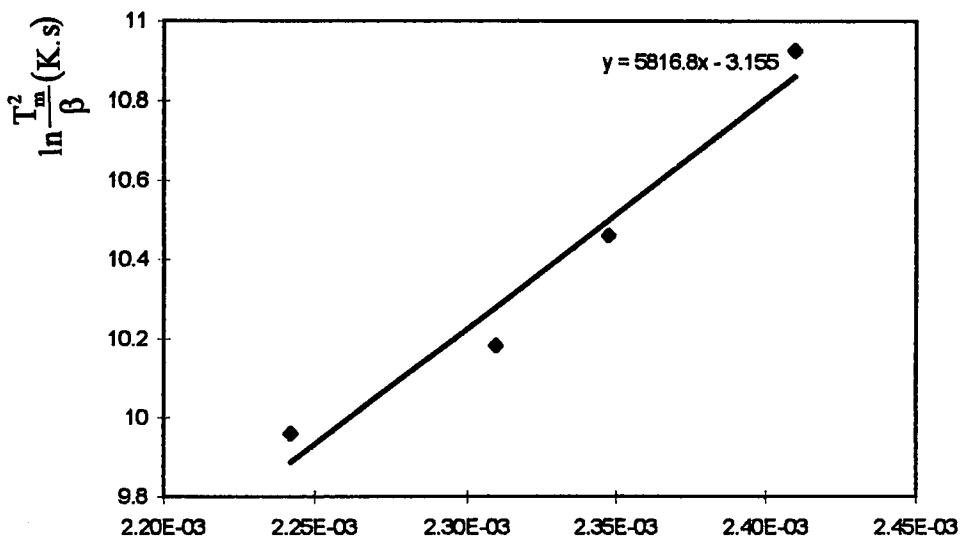
Şekil 6.16. 200°C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



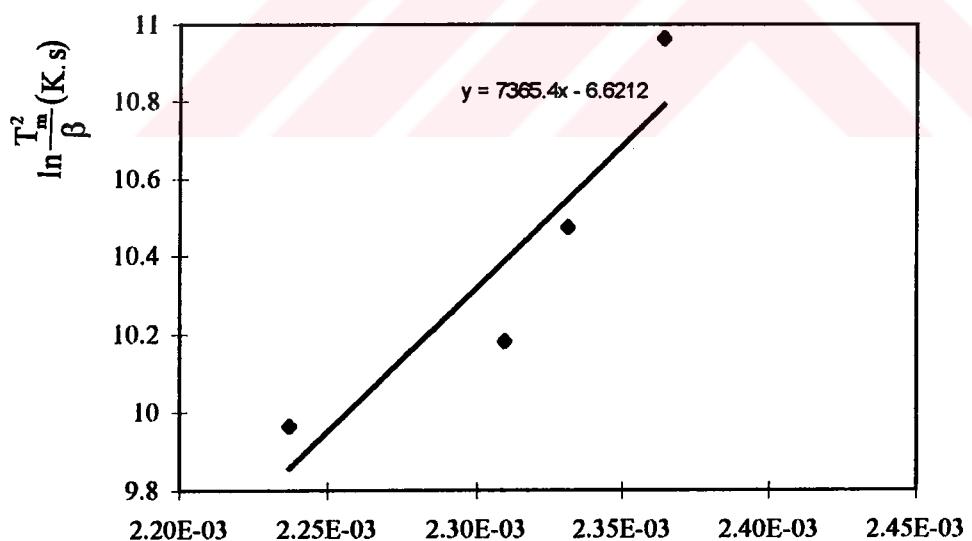
Şekil 6.17. 300^0C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.16 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



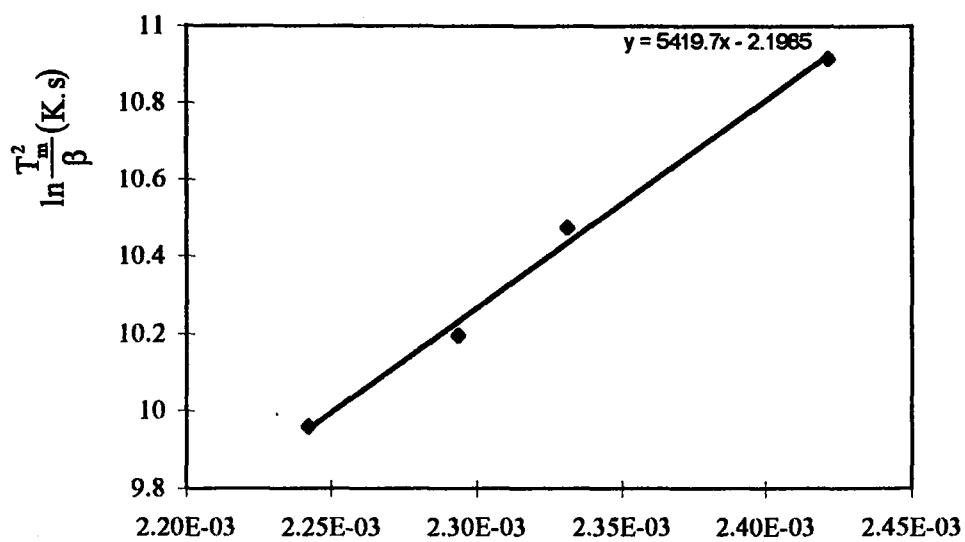
Şekil 6.18. 100^0C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



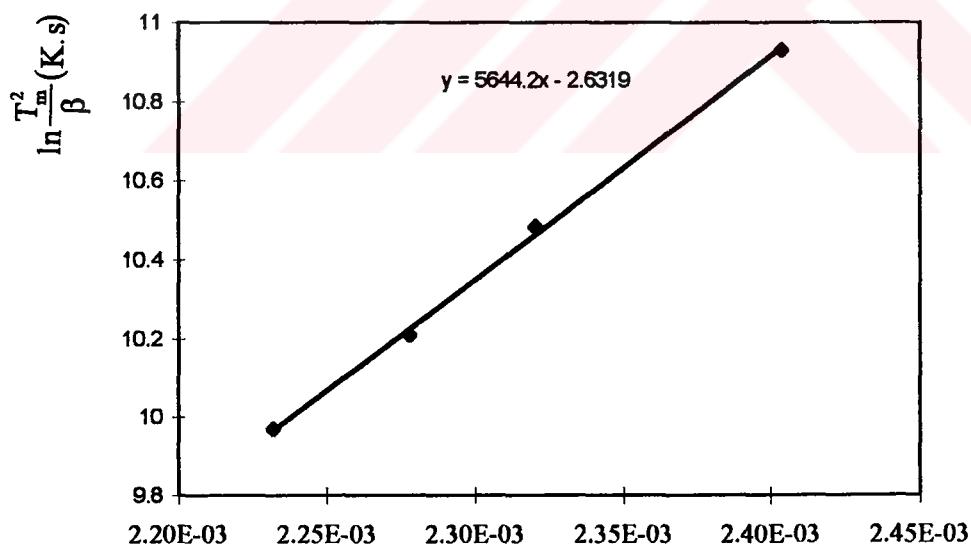
Şekil 6.19. 200^0C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



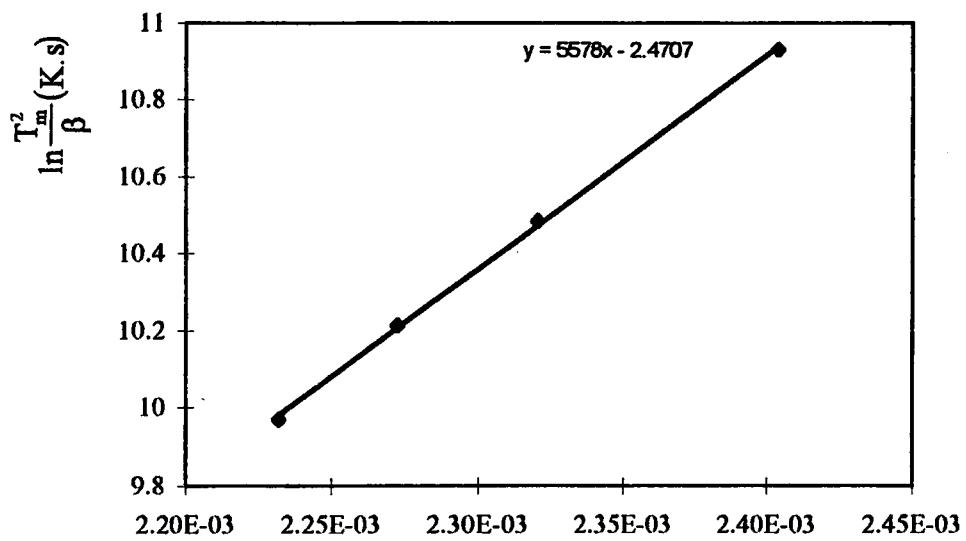
Şekil 6.20. 300^0C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.33 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



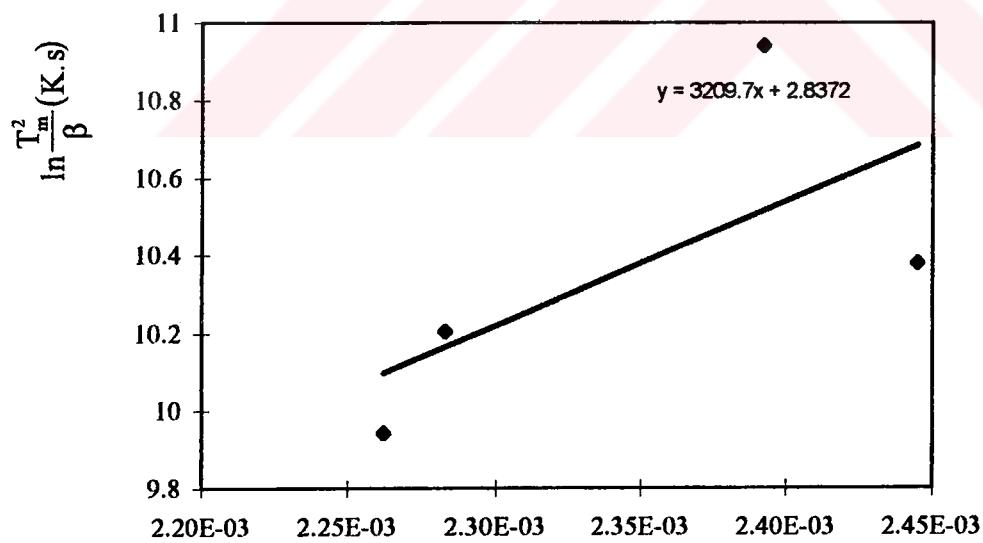
Şekil 6.21. 100°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



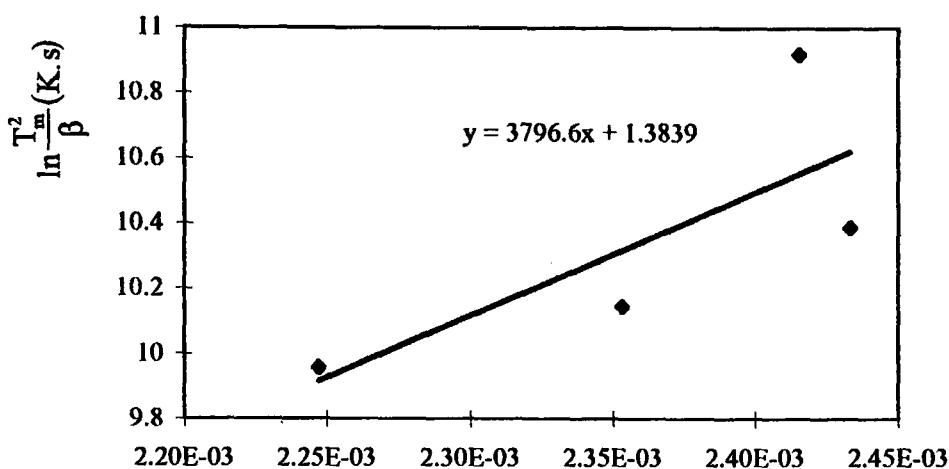
Şekil 6.22. 200°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



Şekil 6.23. 300°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.66 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



Şekil 6.24. 100°C'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması



Şekil 6.25. 300^0C 'de aniliye edilmiş olan kuvars mineralinin 0.99 kGy gama dozu ile ışınlandıktan sonra farklı ısıtma hızları yöntemiyle tuzak enerji seviyesinin bulunması

Tablo 6.6 0.16 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde bulunan E tuzak derinliği, s frekans faktörü.

Anilasyon sıcaklığı (^0C)	β ($^0\text{C}/\text{s}$)	T_m (K)	E (eV)	s(s^{-1})
100	3.1	409	0.36	3.903×10^3
	5.2	416	0.36	3.155×10^3
	7.1	436	0.36	2.427×10^3
	9.4	443	0.36	2.555×10^3
200	3.1	408	0.36	1.984×10^3
	5.2	419	0.36	2.396×10^3
	7.1	435	0.36	2.085×10^3
	9.4	446	0.36	2.659×10^3
300	3.1	408	0.50	1.477×10^5
	5.2	420	0.50	1.5346×10^5
	7.1	433	0.50	1.3088×10^5
	9.4	446	0.50	1.0998×10^5

Tablo 6.7. 0.33 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde bulunan E tuzak derinliği, s frekans faktörü.

Anilasyon sıcaklığı (°C)	β (°C/s)	T _m (K)	E (eV)	s (s ⁻¹)
100	3.1	413	0.46	4.051x 10 ⁵
	5.2	425	0.46	4.33x 10 ⁵
	7.1	433	0.46	2.20x 10 ⁵
	9.4	446	0.46	3.88x 10 ⁵
200	3.1	415	0.50	1.267x 10 ⁵
	5.2	426	0.50	1.860x 10 ⁵
	7.1	433	0.50	1.308x 10 ⁵
	9.4	446	0.50	1.099x 10 ⁵
300	3.1	423	0.63	4.175x 10 ⁶
	5.2	429	0.63	5.33x 10 ⁵
	7.1	433	0.63	6.09x 10 ⁶
	9.4	447	0.63	3.41x 10 ⁶

Tablo 6.8. 0.66 kGy radyasyon dozu ile ışınlanmış kuvars kristalinin farklı ısıtma hızı değerlerinde bulunan E tuzak derinliği, s frekans faktörü.

Anilasyon sıcaklığı (°C)	β (°C/s)	T _m (K)	E (eV)	s (s ⁻¹)
100	3.1	416	0.46	3.82x10 ⁴
	5.2	429	0.46	4.05x10 ⁴
	7.1	436	0.46	4.36x10 ⁴
	9.4	446	0.46	6.67x10 ⁴
200	3.1	416	0.48	6.87x10 ⁴
	5.2	431	0.48	4.16x10 ⁴
	7.1	439	0.48	6.89x10 ⁴
	9.4	448	0.48	6.75x10 ⁴
300	3.1	416	0.50	5.78x 10 ⁵
	5.2	431	0.50	5.64x 10 ⁵
	7.1	440	0.50	5.66x 10 ⁵
	9.4	448	0.50	5.75x 10 ⁵

6.6. Sistematik Hatalar

Kuvars örneklerin aniliye işlemleri, işınlama öncesi ve sonrası ölçümleri ile değerlendirme safhalarında ortaya çıkan sistematik hatalar genellikle ölçüm sistemleri ve insan faktöründen kaynaklanmaktadır. Bunlar,

- 1) Anilasyon işlemleri sırasında yapılan hatalar: Bu amaçla kullanılan tavlama fırının (etüv) sıcaklığını belirleme ve stabil hale getirmeden kaynaklanan hatalardır. İstenilen sıcaklıklarda meydana gelebilecek dalgalanmalar, kristalin tuzaklarındaki elektronların boşaltılmasında etkilidir ve bu nedenle sıcaklıkta yapılacak hatalar parametrelerin hesaplarına yansıyacaktır.
- 2) İkinci sistematik hata, tavlanan örneklerin karanlıkta kapsüllere doldurulurken, fırından alınırken ve TL cihazına konulmadan önce dış kaynaklı ışınlara maruz kalması sonucunda ortaya çıkar. Bu ışınların tuzakların az da olsa dolmasına neden olur.
- 3) Bir başka sistematik hata işınlamadan kaynaklanan hatadır. Bu ise işınlama sisteminin bir üst sistemle karşılaştırılması (kalibrasyonu) ve işınlamada hesaplanan zamana dayalı doz miktarından kaynaklanan hatalardır.
- 4) TL ölçüm cihazından kaynaklanan hatalar:.. Bu cihaz son derece hassas olup çevre şartlarından (sıcaklık,nem,v.s.) etkilenir. Bu nedenle bu cihazdan kaynaklanan hata fazla miktarda TL sayımı alınıp bunların değerlendirilmesiyle kaynak sayımları ile test edilerek saptanabilir. TL cihazından gelen hata %5 civarındadır. İki gün boyunca alınan ölçümllerin normalize edilmesi gerekir. Bunlar hesaba katıldığında TL ölçümllerinde yapılan hata %10'un üzerindedir.
- 5) Grafik çizim ve eğimlerin değerlendirilmesinden ortaya çıkan hata da sözkonusudur.

6.7 Sonuç

Bu çalışmada sentetik toz kristal yapılı kuvars mineralinin gama radyasyonu altındaki davranışı incelenmiştir. Bu amaçla termoluminesan teknik kullanılmış ve işınlanan örneklerin ayrı ayrı ışıl ışıma eğrileri çizdirilerek incelenmiştir. Elde edilen ışıl ışıma eğrilerindeki pikler, literatürde verilen karakteristik piklerle uyum

içindedir. Ayrıca pik yüksekliklerinin dozla attığı ve doz-pik ilişkisinin lineer bir artış izlediği saptanmıştır.

TL cihazı ile yaptığımız ölçümlerde 5.2°C/s ısıtma hızı ile elde edilen değerler gama kaynağında ışınlandıktan hemen sonra alınmıştır. 3.1°C/s , 7.1°C/s , 9.4°C/s ısıtma hızında aldığımız ölçümler ise yaklaşık olarak 19 saat sonra alınmıştır. 5.2°C/s ısıtma hızındaki ıslı ışima eğrilerinin diğerlerinden daha önce ölçüm yapıldığı için tuzak enerji seviyeleri boşalması daha az görülmektedir. 100°C ve 300°C 'de aniliye edilmiş kuvars mineralinin 0.99kGy 'e ışınlandıktan sonra bu ısıtma hızında elde edilen ıslı ışima eğrilerindeki ilk karakteristik pikte ayrıca çatallaşma görülmüştür. Bu durum tek kristallerin piklerinde görülmektedir.

Elektron enerji tuzak parametrelerini saptamada farklı ısıtma hızları yöntemi kullanılmıştır. Bu yöntemde sıcaklığa bağlı pik kaymaları ıslı ışima eğrileri üzerinde belirlenmiş ve bu bulgulardan hareketle tuzak enerji değerleri saptanmıştır. Tezimizin asıl amacı, bu tuzak enerji seviyelerini saptamaktır. Bulgularımız tuzak enerji derinliğinin 0.36eV ile 0.63eV değerleri arasında değiştiğini göstermektedir (Tablo 6.5, Tablo 6.6, Tablo 6.7). Bölüm 6.6'da belirtilen hata analizleri gözönüne alındığında bu değerler 0.57eV ile 1.00eV arasında olmaktadır. Tek kristalli kuvarsın tuzak derinlikleri literatürde 0.84eV ile 0.99eV olarak verilmektedir. Kendi bulgularımız ve hata payları gözönüne alındığında sonuçlar literatürle paralellik göstermektedir.

100°C ve 300°C 'de aniliye edilmiş kuvars mineralinin 0.99kGy 'e ışınlandıktan sonra 5.2°C/s ısıtma hızında elde edilen ıslı ışima eğrilerindeki ilk karakteristik pikte çatallaşmadan dolayı enerji tuzak parametreleri çok düşük çıkmaktadır. Bu nedenle, bu değerlerdeki ölçümler için enerji tuzak parametreleri hesaplanmamıştır.

Ayrıca tuzak enerji parametrelerinden biri olan frekans faktörü de hesaplanmış olup bunlar $1.98 \times 10^3\text{s}^{-1}$ ile $6.09 \times 10^6\text{s}^{-1}$ arasında değişmektedir. Eğer hata analizi yaparsak sonuçlarımız $1.23 \times 10^6\text{s}^{-1}$ ile $4.65 \times 10^{11}\text{s}^{-1}$ arasında değişecektir. Frekans faktörleri ulaşılabilen literatürdeki farklı ısıtma hızları yöntemi yapılan hesaplamalarda bu değerlerle karşılaştırma yapabileceğimiz bir kaynakla karşılaşılmadı.

Çalışmamızda kullanılan yöntem (TL), çeşitli uygulama alanları olan bir fiziksel yöntemdir. Kuvars doğada çok bulunabilirliği, etkisinde kaldığı radyasyon dozunu tuzak elektronları yoluyla binlerce yıl koruyabilmesi özelliğinden ötürü özellikle radyasyon dozimetrisi, tarihleme ve jeolojik çalışmalarında yaygın olarak kullanılmaktadır.

KAYNAKLAR

1. BECQUEREL,E.,1885. Spectroscopic Studies of Solids Rendered Phosphorescent by Action of Light or by Electric Discharge., C. R. Acad.Sci., 101, 205, Paris.
2. BOOTH, A. H., 1954. Calculation of Electron Trap Depth from TL Maxima Can. J. Chem. 32, 214
3. BRAUNLICH, P.,1967. J.Apply. Phys. 38,2516
4. BULUŞ KIRIKKAYA, E.,1996, LiF ve Kuvars'ın Dozimetrik Özelliklerinin İncelenmesi ve Radyasyon Dozimetrisine Uygunluğunun Araştırılması. Kocaeli Üniversitesi, Fen Bilimleri Enstitüsü, Yüksek Lisans Tezi,37, Kocaeli.
5. CHARLEBSY, A., 1981. Field Enhanced Luminescence of Irradiated Organics due to Electron Tunelling., Radiat. Phys. Chem, 17,399
6. CHEN, R. and WINER, S.A. , 1970. Effects of Various Heating Rates on Glow Curves, J. Appl. Phys.,41,5227
7. CHEN, R. and KIRSH, 1981., Analysis of Thermally Stimulated Processes. Pergamon, Oxford.
8. CROISSETTE, D.L., 1965. Prentice Hall Electrical Engineering Series. Transistor. Prentice Hall Inc, 22-56 , Englewood Cliffs, N. J.
9. DU FAY, C.F. , 1738. Hist. de l'Acad Roy. de Sci. de Paris, 1726, 56. Paris.
10. DURLU, T. N., 1992. Katıhal Fiziğine Giriş. İkinci Baskı Set Ofset Ltd.125-145, Ankara
11. ENGİN, B., 1996. Doğal Kalsit Minerallerinin Termoluminesans ve ESR Yöntemleriyle İncelenmesi ve Tarihlenmesi, Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Doktora Tezi, Ankara.
- 12.ENGİN, B. ve GÜVEN, O., 1997. Termoluminescence Dating of Denizli Travertines from the Southwestern Part of Turkey, Appl. Radiat. Isot. 48. 1257-1264
13. FLEMING, S. J., 1968. Journal of Material Science 46,1569
14. GARLICK, G.F.J. and GIBSON, A.F., 1948. The Electron Trap Mechanism of Luminescence in Sulphide and Silicate Phosphors, Proc. Phys. Soc, 60, 574-590
15. GÖKSEL, S. ,1973. Radyasyonların Biyolojik Etkileri ve Radyasyon Koruması.

İTÜ Matbaası. Gümüşsuyu, İstanbul

16. HAMA, Y., KIMURA, Y., TSUMURA, M. and OMI, N. , 1980. J. Chem. Phys., 53, 115.
17. HENRY, C.H. and LANG, D.V., 1977. Nonradiative Capture and Recombination by multiphonon emission in GaAs and GaP, Phys. Rev. B15, 989
18. HOOGENSTRAATEN.,W. 1958. Electron Traps in Zinc Sulphide phosphors, Philips Res. Rep, 13, 515-562.
19. KEATING, P. N., 1961. Thermally Stimulated Emission and Conductivity Peaks in the Case Temperature Dependent Trapping Cross Sections. Proc. Phys. Soc. Vol:78, 1408
20. Mc KEEVER, S.W.S., 1985. Thermoluminescence of Solids, Cambridge U.P., Cambridge
21. MEDLIN, W.L., 1963. Termoluminescence in Quartz, The Journal of Chemical Physics, 38, 1132-1142
22. NICHOLS, K.G. and VERVOLIN, E.V., 1966. Transistor Physics, 9-11, Cambridge
23. PÄSSLER, R., 1978. Temperature Dependences of The Nonradiative Multiphonon Carrier Capture and Ejection Properties of Deep Traps in Semiconductors, Phys. Stat. Sol. (B), 85, 203.
24. PRINGSHEIM, P. and VOGEL, M., 1946. Luminescence of Liquids and Solids and its Practical Applications, Interscience Publishers, Inc. New York, N.Y.
25. RANDALL, J.T. and WILKINS, M.H.F., 1945a. Phosphorescence and Electron Traps, Proceedings of The Royal Society A, 184, 366-407
26. RAZDAN, K. N. , WIATROWSKY, W.G. and BRENNAN, W.D., 1973. Calculation Termolüminescence Glow Curves by Analog Computer. Appl. Phys., Vol. 44, 5483-5488
27. SEITZ, F., 1946, Color Centers in Alkali Halide Crystals, Rev. Modern. Phys, 18,3, 384-408
28. VISOCEKAS, R., CEVA, T., MARTI, C., LEFAUCHEUX, F. and ROBERT, M.C., 1976. Tunelling Processes in Afterglow of Calcite, Phys. Stat. Solidi, A35, 315-327
29. ZHANG, D. , PEIHVA, H. and SIZHAO, J. , 1993. The improved shematic band model for ESR and TL dating . Apply Radiation Isot. 44, 287-291